N° d'enregistrement
au C.N.R.S.
A.O. 35 36

THÈSE

PRÉSENTÉE A LA

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES NATURELLES

PAR

Gilbert DUNOYER de SEGONZAC

Les minéraux argileux dans la diagenèse. Passage au métamorphisme.

SOUTENUE PUBLIQUEMENT LE 30 SEPTEMBRE 1969
DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN :

MM. G. MILLOT, Président
G. OURISSON
J. LUCAS
J. RAVIER
A. PERRODON

N° d'enregistrement
au C.N.R.S.
A.O. 35 36

THÈSE

PRÉSENTÉE A LA

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES NATURELLES

PAR

Gilbert DUNOYER de SEGONZAC

Les minéraux argileux dans la diagenèse. Passage au métamorphisme.

SOUTENUE PUBLIQUEMENT LE 30 SEPTEMBRE 1969

DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN :

MM. G. MILLOT, Président
G. OURISSON
J. LUCAS
J. RAVIER
A. PERRODON

UNIVERSITE DE STRASBOURG – FACULTE DES SCIENCES

Doyen

Professeur VIVIEN J.H.

Doyens Honoraires

KIRRMANN A., LACROUTE P., MARESQUELLE H.J., MILLOT G.,

Professeurs Honoraires

DE BEAUCHAMP P., BOISSELET L., CARTAN H., CERF G., CHAVAUTY C., CHRETIEN A., DENY J., EHRESMANN Ch., FRECHET M., Mlle GILLET S., HEE A., HOCART R., KIRRMANN A., LEMEE G., L'HERITIER P., LICHNEROWICZ A., NEEL L., SADRON Ch., TERROINE E., VILLAT H., WEISS H., WOLFF Et., YVON J.

Maître de Conférences Honoraire :

R. WEIL

Professeurs

MM.	MARESQUELLE H.J.	T	Biologie végétale
	FORESTIER H.	T.	Chimie générale
	ROTHE J.	T.	Physique du Globe
	LACROUTE P.	T.	Astronomie
	VIVIEN J.H.	T.	Zoologie et Embryologie expérimentale
	MAILLARD A.	T.	Physicochimie du Pétrole
	GORODETZKY S.	T.	Physique générale et Physique nucléaire
	SACKMANN L.	T.	Mécanique des Fluides
	BYE J.	T.	Chimie Physique
	LOMBARD R.	T.	Chimie organique
Mlle	PEREY M.	T.	Chimie nucléaire
	GOLDSZTAUB S.	T.	Minéralogie et Pétrographie
	JOLY P.	T.	Biologie générale
	BENOIT H.	T.	Physicochimie macromoléculaire
	CUER P.	T.	Physique générale et physique corpusculaire
	MILLOT G.	T.	Géologie et Paléontologie
	LECOLAZET R.	T.T.P.	Physique du Globe
	SAUCIER H.	T.T.P.	Minéralogie
	ROHMER R.	T.	Chimie minérale
Mlle	GAGNIEU A.	T.T.P.	Botanique
	NIKITINE S.	T.	Physique générale
	STUTINSKY F.	T.	Physiologie générale
	WURTZ B.	T.T.P.	Chimie biologique
	BRENET J.	T.	Electrochimie
	OURISSON G.	T.T.P.	Chimie
	COCHE A.	T.T.P.	Physique nucléaire
	CERF R.	T.	Physique générale
	FRENKEL J.	T.T.P.	Mathématiques
	TAGLANG P.	T.	Physique
	LONCHAMP J.P.	T.T.P.	Physique
	DELUZARCHE A.	T.T.P.	Chimie
	DONNET J.B.	T.T.P.	Chimie Physique
	ARMBRUSTER R.	T.T.P.	Physique
	ROCHE A.	T.T.P.	Physique du Globe
	HIRTH L.	T.	Microbiologie
	SIGOT A.	P.S.C.	Zoologie
	FUCHS A.	T.	Mécanique rationnelle
	GALLMANN A.	T.T.P.	Physique
	MIALHE P.	T.T.P.	Physiologie animale
MM.	EBEL J.P.	T.	Chimie biologique
	PARROD J.	T.T.P.	Chimie
	WEY R.	T.T.P.	Chimie
Mme	MAGNAC D.	T.T.P.	Physique
	DAUNE M.	P.S.C.	Physique
	ADLOFF J.P.	T.T.P.	Chimie nucléaire
	BERNARD D.	T.T.P.	Méthodes mathématiques de la physique
	DANIEL E.	T.	Physique expérimentale
	CHEVALLIER P.	T.	Physique
	GREMILLARD J.	T.T.P.	Mécaniques des Fluides
	CARTIER P.	T.	Mathématiques
	REEB G.	T.	Topologie
	CHAUVIN R.	T.	Psychophysiologie
	WUCHER J.	P.S.C.	Physique
Mme	BRINI M.	P.S.C.	Chimie
	BARO R.	P.S.C.	Physique
	DURANTON H.	P.S.C.	Botanique
	WEISS R.	T.T.P.	Chimie
	FEDERLIN P.	T.T.P.	Chimie
	LERAY J.	P.S.C.	Physique
	SCHWING J.P.	P.S.C.	Chimie
	SIESKIND M.	P.S.C.	Physique
	MONSONEGO G.	T.	Physique théorique
	GABRIEL P.	T.T.P.	Mathématiques
	WIPPLER C.	T.	Physicochimie des Hauts Polymères ind.
	MEYER P.A.	T.T.P.	Mathématiques
	WEILL G.	P.S.C.	Physique
	BLOCH J.M.	T.	Chimie
	CLAUSS A.	P.S.C.	Chimie
	FOLLENIUS E.	P.S.C.	Zoologie
	LUCAS J.	P.S.C.	Géologie
	THIEBOLD J.J.	P.S.C.	Biologie animale
	GLAESER G.	T.	Méthématiques
	WEIL J.H.	P.S.C.	Chimie biologique
	FOATA D.	P.S.C.	Mathématiques
	DANAN H.	P.S.C.	Physique
	FERNIQUE X.	P.S.C.	Mathématiques
	GAUTIER F.	P.S.C.	Physique
	SUTTER G.	P.S.C.	Physique électronique

Professeurs associés :

MM.	BANDERET A.	E.A.H.P.	
	CLELAND R.	Physique	
MM.	PEROLD G.	Chimie	
	SAMPSON J.	Mathématiques	

Maîtres de Conférences :

Mme	WINTER Chr	Physique
MM.	EBERHART J.P.	Minéralogie
Mme	CAGNIANT D.	Chimie
MM.	STREITH J.	Chimie
	LEHN J.M.	Chimie
	ROBERT Cl.	Physique
	LACROUTE Fr.	Biologie végétale
	GIRARDIE A.	Biologie animale
	GOUNOT M.	Botanique
	DEHAND J.	Chimie minérale
	PRADINES J.	Mathématiques
	BECKER F.	Physique mathématique
MM.	KAROUBI M.	Mathématiques
	MIGNOT A.	Mathématiques appliquées
	GERARD R.	Mathématiques
	ROUX J.	Botanique
	VOLTZ R.	Physique théorique
	MICHARD A.	Géologie
	GIRAUD J.M.	Mathématiques
	BOULANGER Y.	Chimie biologique
	DACUNHA-CASTELLE D.	Mathématiques
	BRETAGNOLLE J.P.	Mathématiques
	RIEHL J.J.	Chimie
	DELACHERIE Cl.	Mathématiques

Maîtres de Conférences associés :

MM.	AVANISSIAN V.	Mathématiques
	CAIROLI R.	Mathématiques
	DADE E.	Mathématiques
	GOLDWHITE H.	Chimie
MM.	LETTA G.	Mathématiques
	RINEHART G.	Mathématiques
	NIKOLIC M.	Physique corpusculaire

Secrétaire général de la faculté

SAINT-PE G.

UNIV. LEIDEN BIBL.

REMERCIEMENTS

Je voudrais inscrire ici, avant tout, le nom de Georges MILLOT. Il m'a accueilli à Strasbourg en 1959. Je lui dois le sujet du travail que je présente aujourd'hui. Je lui dois les moyens techniques mis en oeuvre pour le réaliser. Je lui dois surtout ce que dix années de collaboration quotidienne m'ont apporté à tous égards. Ceux qui connaissent Georges MILLOT savent ce que cela représente. Ils comprendront la valeur du témoignage d'affection, de reconnaissance et de respect que j'exprime ici.

C'est mon premier patron Louis BARRABÉ qui m'a orienté vers Strasbourg au sortir de l'Ecole Normale Supérieure. C'était pour moi, débutant, un saut dans l'inconnu. Je dois à François ELLENBERGER de m'avoir fait valoir l'intérêt qu'offrait une telle perspective et d'avoir enlevé ma décision. Je lui en serai toujours reconnaissant.

Je veux ensuite remercier ceux qui ont accepté de faire partie de mon jury de thèse aux côtés de M. MILLOT. Jacques LUCAS est mon compagnon de tous les jours ; je saisis cette occasion de lui dire mon estime et mon amitié. M. PERRODON a joué un rôle déterminant dans le déroulement de mon travail. C'est lui qui, dès 1963, a mis à ma disposition certains forages profonds pour l'étude de la diagenèse des argiles. Il n'a cessé de s'intéresser aux problèmes soulevés et de m'apporter jusqu'à la fin son aide et ses encouragements, acceptant de lire et de critiquer mon manuscrit chapitre par chapitre. MM. RAVIER et OURISSON ont apporté leur compétence sur des chapitres particuliers, concernant la pétrographie du métamorphisme d'une part et la géochimie organique d'autre part.

Le sujet d'ensemble que j'ai abordé nécessitait un échantillonnage abondant et dispersé. Je remercie tous ceux qui m'ont conseillé, m'ont procuré des échantillons ou guidé sur le terrain. MM. FABRE, GEVIN et SCHAER en Afrique ; MM. BORDET, ELLENBERGER, LEMOINE, LOMBARD, MICHARD et VIALON dans les Alpes ; M. CAPDEVILA en Galice ; MM. GUITARD et CAVET dans les Pyrénées ; M. GEZE dans la Montagne Noire ; M. ROQUES dans le Massif Central ; MM. COGNÉ et JEANNETTE en Bretagne ; MM. von ELLER et BLANALT dans les Vosges.

Les échantillons de terrain ont été précieux pour l'étude du passage au métamorphisme. Mais c'est grâce aux échantillons de forages que les stades intermédiaires de la diagenèse ont été mis en évidence. Je veux remercier, sans pouvoir les nommer tous, ceux qui, outre M. PERRODON, m'ont permis cet échantillonnage, m'ont accueilli dans les laboratoires pétroliers, m'ont aidé et instruit : MM. REYRE, TEMPERE, CLARET et MORGNIEUX à ELF ; MM. RADIER, KULBICKI, ESQUEVIN, KUBLER, ARTRU, GAUTHIER et STEVAUX à la S.N.P.A. ; MM. BUROLLET, SACAL, FERRERO, COMBAZ et GIRAUD à la C.F.P. ; MM. CHENNAUX et FRANÇOIS à la S.N. REPAL.

Il est impossible de citer tous ceux qui, à des titres et des degrés divers, se sont intéressés à mon travail et m'ont encouragé. Je voudrais toutefois nommer MM. ALBRECHT, ALPERN, DURAND-DELGA, de la ROCHE, SABATIER, SLANSKY et VELDE ; mes camarades de l'Ecole Normale Supérieure Jean TRICHET et Pierre-Charles de GRACIANSKY ; mes anciens élèves de Strasbourg Anne-Marie et Georges BRONNER, Hervé CHAMLEY ; MM. GAGNY et NICOLAS pour les questions de séparation des minéraux ; MM. FÜCHTBAUER, MÜLLER et WINKLER en Allemagne ; MM. BISCAYE, BURST et FARRAND aux Etats-Unis ; M. MARTIN-VIVALDI en Espagne ; M. KISCH aux Pays-Bas.

M. WEGMANN m'a accordé son soutien dès le premier jour. La hauteur de ses vues scientifiques m'a été source d'inspiration. Je tiens à lui dire l'aide puissante qu'il m'a apportée en me donnant sa confiance et à l'en remercier très chaleureusement.

Nos voisins minéralogistes de Strasbourg m'ont accueilli bien souvent pour de fructueuses conversations. Leur grande culture et leur amabilité n'ont jamais été prises en défaut. Je pense en particulier à MM. GOLDSZTAUB, SAUCIER, WEY, WEIL et SIAT.

Au centre C.N.R.S. de Sédimentologie et de Géochimie de la Surface, à Strasbourg, où s'est fait mon travail de laboratoire, la simplicité et l'exceptionnelle franchise des rapports entretiennent un climat de confiance favorable aux échanges scientifiques. J'ai beaucoup appris dans les conversations avec Camille ADLOFF, Gürol ATAMAN, Yves BESNUS, Michel BONHOMME, Mlle DOUBINGER, Léa GRAUVOGEL, Guy JEHL, Philippe LARQUÉ, André MEILHAC, André NOVIKOV, Hélène PAQUET, André PACQUET, Liliane PRÉVÔT, Monique SCHULER, Gaston SIEFFERMANN, Claude SITTLER, Frédéric SOMMER, Yves TARDY, Norbert TRAUTH, Françis WEBER, Paul WERNERT. Mais ma dette de reconnaissance est particulièrement lourde envers Norbert CLAUER, Sylvie de LAPPARENT, Christine MOSSER et Danièle HICKEL. Ils ont assumé l'un après l'autre avec une patience exemplaire, les charges ingrates de l'assistance technique. Sans leur aide efficace et généreuse ce mémoire serait encore en chantier. Je remercie enfin tous les techniciens et employés du Centre : c'est grâce à leur travail que des milliers de mesures peuvent être présentées dans les pages qui suivent.

Au Laboratoire de Géologie de la Faculté des Sciences de Strasbourg, l'équipe enseignante m'a considérablement aidé en me dégageant de la plupart de mes tâches collectives au cours de l'hiver dernier, pour me permettre de me concentrer sur ma rédaction. Je remercie très chaleureusement Jacques LUCAS, André MICHARD, Jeanne SITTLER, Michel RUHLAND, Jean-Claude GALL, Raymond RAUSCHER, Marie-Odile BONGRAND, André MEILHAC, Bernard HASSENFORDER et Hubert SOMMELET. D'innombrables services m'ont été rendus au Laboratoire de Géologie, où règne la confiance et où chacun se sent au service des autres. J'exprime ma reconnaissance à Mlle FRUHINSHOLZ et Mme STEHLÉ au secrétariat du patron, à Mme SCHNEEGANS et Mme ORY à la bibliothèque, à M. HAMEL à l'atelier de pétrographie, à MM. GRUNER et OPPERMANN dessinateurs. Je remercie enfin M. HUGEL, chef des services généraux, et toute son équipe qui ont assuré la fabrication de ce mémoire avec une grande compétence et une inlassable gentillesse.

Strasbourg, le 31 août 1969

PLAN DE L'OUVRAGE

Pages

I° Partie : La notion de diagenèse 9

L'analyse des transformations subies par les minéraux argileux après la sédimentation pose la question du moment et du lieu où ces transformations se sont exercées. Il est nécessaire de connaître le sens qu'a pris le terme de diagenèse depuis sa création, il y a un siècle, à travers les différentes écoles et les disciplines diverses.

II° Partie : Méthodes expérimentales 45

Cette partie, très brève, a pour seul but de donner la référence des appareillages utilisés et de décrire les méthodes originales qui ont été spécialement mises en oeuvre pour ce travail.

III° Partie : Etude de quelques séries d'Afrique 57

Les séries étudiées dans les III° et IV° parties ne correspondent pas à un souci de synthèse régionale. Elles ont été choisies en fonction de leurs caractères lithologiques (séries détritiques, argileuses, épaisses et monotones d'âges divers) et de leurs conditions d'enfouissement ancien ou actuel. Ce sont, dans l'ordre :

1 - Les forages de Logbaba
2 - Le bassin de Fort Polignac (Sahara)
3 - Le Trias gréseux dans le Sahara du nord-est
4 - Le forage d'Assejmi (Bassin de Tindouf, Sahara)
5 - Le forage d'Adrar Zougar (Anti-Atlas)
6 - Le Siluro-dévonien à pyrophyllite au Sahara

IV° Partie : Etude de quelques séries de France et d'Italie 135

1 - Le forage de Pierrefeu (Gard)
2 - Le forage de Contres (Loir et Cher)
3 - Le forage d'Adamswiller (Bas-Rhin)
4 - Les "Terres Noires" jurassiques dans le Bassin de la Durance
5 - Les "Marbres en Plaquettes" de la zone briançonnaise
6 - Quartzites et "Schistes Lustrés" dans la zone piémontaise
7 - Le Paléozoïque de la Montagne Noire
8 - Les micaschistes des Pyrénées orientales

V° Partie : Vue d'ensemble sur les minéraux argileux dans la diagenèse 207

Les chapitres qui précèdent ont permis de saisir les grandes lignes des transformations postsédimentaires ayant affecté chaque série régionale. On groupe maintenant ces

conclusions partielles pour approcher les lois qui régissent l'évolution diagénétique et métamorphique propre à chaque type de réseau cristallographique.

1 - Kaolinites
2 - Montmorillonites
3 - Interstratifiés
4 - Illites
5 - Micas
6 - Chlorites
7 - Une vue d'ensemble est proposée dans le dernier chapitre.

Elle tente de cerner les grands mécanismes qui régissent l'évolution des silicates à la surface de l'écorce et, en particulier, dans la zone de diagenèse.

PREMIÈRE PARTIE

LA NOTION DE DIAGENÈSE

La dernière décade a vu paraître un certain nombre de mises au point sur les grandes notions qui régissent notre compréhension des phénomènes géologiques. Ainsi furent analysées les principales données de l'évolution orogénique telle qu'on l'a conçue depuis la fructueuse notion de géosynclinal (AUBOUIN, 1959, 1961) ; ainsi fut reprise la notion de faciès depuis sa naissance il y a près d'un siècle et demi (TEICHERT, 1958; WEGMANN, 1962; FRANKE, 1963). Un tel souci se justifie parfaitement si l'on songe à l'évolution du contenu des mots et à l'influence que ces mots eux-mêmes exercent sur notre interprétation des phénomènes. Le rôle joué par les concepts, les "Leitbilder", a été magistralement analysé par WEGMANN (1958) à propos des idées de WERNER et de HUTTON. Une révision de certaines notions directrices s'impose, le moment venu, et on a récemment insisté (ROUTHIER, 1966) sur la nécessité des synthèses partielles ou "synthèses étagées" dans tous les domaines de la recherche.

Cette nécessité des synthèses, des retours en arrière, est bien évidente, mais les travaux de ce genre sont rares, même dans le cadre des Congrès Internationaux et des Symposiums où l'on serait en droit d'attendre la mise au point des connaissances sur un chapitre déterminé et des changements que ces nouvelles connaissances apportent aux "notions fondamentales" qui les ont inspirées. C'est encore WEGMANN (1962) qui donne les raisons de cette carence. Je cite :

"Une grande partie des géologues, des paléontologistes et des pétrographes ont l'habitude de voir les objets de leurs études comme le résultat d'une évolution. Ils cherchent à reconstituer les états antérieurs et les origines et, en rapprochant ces états, ils obtiennent pour ainsi dire le film de l'évolution. En revanche, peu de géologues et de pétrographes prennent la peine de reconstituer l'image évolutive d'un de leurs outils de travail les plus importants : les notions fondamentales de leur science. Ce fait est étonnant. Il serait intéressant d'étudier les causes et les raisons de ce manque d'attention voué à l'évolution et à la transformation des notions. Ces raisons sont multiples. Nous ne voulons pas les étudier ici. Nous ne mentionnerons qu'une d'entre elles, qui a probablement rebuté un grand nombre de chercheurs : l'étendue des recherches bibliographiques nécessaires à une telle entreprise. Celle-ci est rendue difficile par la carence de la documentation ancienne qui se fait particulièrement sentir dans les centres nouvellement créés. D'autre part, pour vraiment connaître la structure logique des notions, il est nécessaire d'étudier les antécédents et le milieu des grandes découvertes de la science. Pour les comprendre, il faut avoir une certaine culture historique, sans laquelle il n'est pas possible d'utiliser les documents".

Les travaux récents de pétrographie sédimentaire, menés indépendamment aux Etats-Unis et en Union Soviétique ont mis en lumière des phénomènes complexes, divers et importants qu'on a décrits comme "diagénétiques". La diagenèse est justement une de ces notions qui, après un siècle d'existence, s'est singulièrement compliquée. Simple et vague à ses débuts, elle s'est alourdie de faits nouveaux, disparates ; elle a subi des "aventures", selon l'expression de J. AUBOUIN (1959).

Le grand nombre des chercheurs qui s'intéressent actuellement à la diagenèse et les échanges bibliographiques multipliés entre des pays de cultures différentes ont rendu nécessaire un examen détaillé de la notion de diagenèse. Cela est si vrai que certains auteurs, confrontés à des problèmes géologiques faisant intervenir la "diagenèse", se trouvent dans la nécessité de préciser pour eux-mêmes et pour leurs lecteurs le sens qu'il faut donner à ce terme. Ainsi ont vu le jour des mises au point partielles dont la plus complète à ce jour est celle de TEICHERT (1965).

Sans une connaissance critique des faits que recouvrent les mots, des incompréhensions, sinon des querelles, rendront bientôt difficile le dialogue entre spécialistes. Nous tentons ici cette

analyse critique sans proposer aucun système nouveau, cherchant seulement à faire toute la lumière sur cette zone obscure de la diagenèse, si longtemps rejetée à la fois par les pétrographes des sédiments, qu'elle n'intéressait plus, et par les pétrographes du métamorphisme, qu'elle n'intéressait pas encore.

CHAPITRE I

LES TEMPS ANCIENS

I - LA NOTION DE DIAGENESE AVANT LA LETTRE

C'est en 1868 que le bibliographe patient voit apparaître pour la première fois le mot "diagenèse" sous la plume de von GÜMBEL. La chose est peu connue car le célèbre traité de WALTHER (1893) fait remonter le mot, par erreur, à 1888. Les traités modernes ont presque tous repris cette erreur de WALTHER qui n'est peut-être, d'ailleurs, qu'une faute d'impression.

Cette diagenèse de 1868 n'a qu'un rapport très lointain avec la diagenèse telle qu'on la conçoit, en gros, aujourd'hui : nous le verrons plus loin. L'idée d'une transformation des sédiments après leur dépôt, en dehors de tout métamorphisme, n'était évidemment pas courante à une époque où la théorie du métamorphisme n'était elle-même pas admise par tous les géologues. Il n'est pas question de reprendre ici l'histoire des théories pétrogénétiques au dix-neuvième siècle. Elle a fait l'objet d'innombrables livres parmi lesquels ceux de ZITTEL (1899), HAARMANN (1935), HOELDER (1960) et FISCHER (1961) occupent la première place. Retenons seulement deux grandes dates, celle de 1797 où HUTTON imagine le premier que des roches sédimentaires puissent devenir roches cristallines et celle de 1833 où la première édition du traité de LYELL introduit le terme de métamorphisme, reprenant les observations des BOUÉ, KEILHAU, STUDER, ELIE DE BEAUMONT, HOFFMANN qui apportaient des preuves évidentes de sédiments transformés.

Quant aux transformations subies par un dépôt dans son histoire "sédimentaire", sa "lithification", il n'en fut question qu'incidemment dans les travaux de SEDGWICK (1835), ou dans ceux de BRYKOV sur les silex, en 1838, que rapporte BOUCHINSKY (1954).

II - LA DIAGENESE DE C. W. VON GÜMBEL (1868, 1888)

GÜMBEL, inventeur du mot "diagenèse", est aussi le premier à avoir imaginé un ensemble de transformations, indépendantes du métamorphisme, qui, du sédiment frais, font une roche compacte. Il est curieux de suivre la pensée du GÜMBEL à travers ses multiples publications et constater que c'est en partant d'une idée fausse que la notion de diagenèse s'est finalement dégagée.

Il y a cent ans, en effet, GÜMBEL est un de ceux que la théorie du métamorphisme ne satisfait pas entièrement. Etudiant les Alpes bavaroises il observe d'épaisses séries schisteuses et gneissiques concordantes et croit y trouver des organismes fossiles : c'est l'époque de l'Eozoon. L'origine sédimentaire de ces terrains lui semble évidente par un processus auquel il donnera le nom de diagenèse.

Il écrit dans une introduction à la géologie bavaroise (sans date, p. 152-153) :

"La formation de ces diverses roches primitives, en particulier des gneiss qui en sont les principaux représentants, donne lieu à des opinions notoirement diverses ; ils représentent pour les uns les premiers éléments solidifiés à la surface de la terre, pour les autres une transformation en masse des roches schisteuses (formations métamorphiques). Il est vraisemblablement plus juste d'envisager leur formation par analogie avec celle des sédiments, comme un précipité dans l'océan primitif sous l'effet de la pression et de la température, suivi d'une transformation (diagenèse) de ces précipités amorphes en composés cristallins ou en minéraux."

La diagenèse est ainsi définie déjà comme une transformation post-sédimentaire et non-métamorphique. Mais les "précipités amorphes" (amorphe Ausscheidungen) auxquels elle s'applique font partie du domaine poétique de la "géognosie", et les produits de son action, micaschistes et gneiss, dépassent évidemment ses possibilités. GÜMBEL s'est pourtant attaché à cette idée. Il y revient souvent dans son gros ouvrage de 1868 (en particulier p. 838 où il discute les relations entre diagenèse et métamorphisme.

C'est finalement dans son traité de 1888 que GÜMBEL donne son dernier point de vue sur cette notion de diagenèse dont il est l'auteur. Il la définit clairement p. 334 :

"Il ne fait guère de doute que des phénomènes chimiques de grande importance s'exercent au fond des mers. C'est par leur action que nous devons nous expliquer la transformation partielle (diagenèse) et la compaction des sédiments par néoformation de matériaux interstitiels."

Mais GÜMBEL s'obstine à mettre sur le compte de ces phénomènes sous-marins la formation des schistes cristallins (pp. 381, 492, 1056, 1058). Une telle affirmation, déjà démodée pour l'époque, ne lui survivra pas. La notion de diagenèse par contre, cantonnée dans le domaine sédimentaire qui est le sien, a attiré l'attention des pétrographes sur les recristallisations postérieures au dépôt. KALKOWSKY, dans ses "Elemente der Lithologie" (1886), en distinguant ce qu'il a appelé "minéraux authigènes" et "minéraux allothigènes" eut clairement la notion des recristallisations post-sédimentaires. Il n'adopta cependant pas le terme créé par GÜMBEL. C'est WALTHER qui devait le faire, sept ans plus tard, de façon magistrale, en ouvrant un nouveau chapitre de la sédimentologie.

III - J. WALTHER (1893-1894) : LE FONDATEUR

A la trilogie classique, érosion-transport-sédimentation, WALTHER apporte des éléments nouveaux. Il décompose en sept stades le grand cycle géochimique, annonçant ainsi l'"analyse stadiale" que les russes pousseront si loin : 1. Altération 2. Erosion 3. Transport 4. "Corrasion" 5. Sédimentation 6. Diagenèse 7. Métamorphisme.

La diagenèse a pris sa place. WALTHER lui consacre un chapitre entier.

Il reprend le terme de GÜMBEL, mais en le sortant de l'impasse où l'avait engagé ce dernier. WALTHER, s'il n'a donc pas créé le mot, se place cependant comme le fondateur de la notion, celui qui lui a donné sa place en géologie.

Il la définit clairement :

"Nous entendons par diagenèse l'ensemble des modifications physiques et chimiques que subit une roche après son dépôt, à l'exclusion des phénomènes orogéniques et volcaniques."

Dans les dix-huit pages qu'il lui consacre, WALTHER analyse tous les travaux du siècle touchant de près ou de loin cette question et ne cite pas moins de 72 références. Ce sont surtout des observations concernant la physico-chimie des eaux océaniques actuelles et les dépôts récents des fonds marins ou des côtes. C'est, rappelons-le, l'époque des premières grandes entreprises océanographiques. La Gazelle, le Challenger, l'Albatros apportent aux sédimentologistes une foule d'observations nouvelles. WALTHER fait le point de ces résultats et annonce déjà les principaux chapitres des recherches futures sur la diagenèse : chimie et microbiologie des eaux et des boues, phénomènes de dessication, de cimentation, de compaction, problème des concrétionnements. Il envisage successivement

- la diagenèse des dépôts détritiques : cimentations, recristallisations, dessalure, concretions.

- la diagenèse des dépôts chimiques (la transformation du gypse en anhydrite, par exemple).

- la diagenèse des dépôts organiques (la carbonisation des matières végétales, silicification des bois, recristallisation et dolomitisation des calcaires biogènes, etc...)

- la diagenèse des dépôts volcaniques (la consolidation des tufs, par exemple).

WALTHER, véritable fondateur de la notion de diagenèse, a eu une excellente intuition de l'importance des phénomènes qu'elle met en jeu, de leur nature et de leurs limites indécises. On peut s'en rendre compte lorsqu'on analyse, ainsi que je vais le faire, les aventures de la notion : bien des auteurs modernes, par delà toutes les divagations, en reviennent finalement à la simple définition de WALTHER.

Comme en bien des domaines des sciences naturelles c'est sur des questions de limites que les divergences d'opinion seront les plus vives. C'est aux frontières qu'ont lieu les combats, et les frontières de la diagenèse sont, par nature, indécises. Elles offrent trois zones sensibles qu'on a représentées de façon imagée sur la fig. 1 :

- la limite sédimentation-diagenèse (I)
- la limite diagenèse-métamorphisme (II)
- la limite diagenèse-altération superficielle. (III)

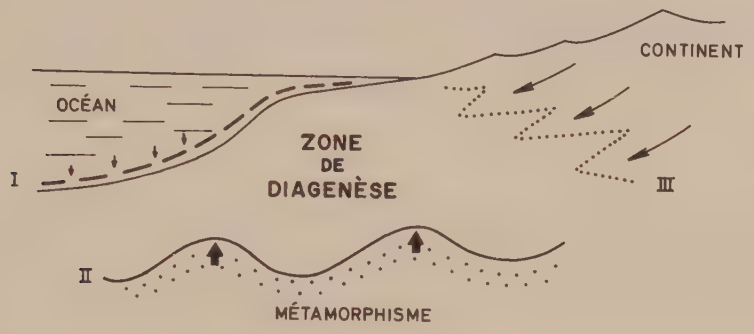


Fig. 1 - Les trois frontières de la diagenèse

I. Où commence la diagenèse ? Problème de l'interaction milieu-sédiment (remaniement, syngenèse, syndiagenèse, predepositional diagenesis, early diagenesis, etc...)

II. Limite diagenèse-métamorphisme. Problème de l'anchimétamorphisme, anchizone, épigenèse, catagenèse, métagenèse, late diagenesis, pré-métamorphisme, etc...)

III. Limite diagenèse-altération superficielle. Problème de la diagenèse régressive (rétrodiagenèse, cémentation, hypergenèse, épigenèse, épidiagenèse, catamorphisme, diaphtorèse, etc...).

Une question se pose à chacune de ces trois frontières :

- quand la diagenèse commence-t-elle exactement ?
- pour quel degré de transformation faut-il abandonner le terme de diagenèse pour celui de métamorphisme ?
- à quel moment les phénomènes de diagenèse régressive deviennent-ils des phénomènes d'altération superficielle ?

On verra comment il a été répondu à ces questions suivant les lieux, les époques et les écoles depuis WALTHER jusqu'à nous. On le verra en envisageant l'une après l'autre les différentes littératures. C'est un fait que les chercheurs lisent d'abord et surtout, sinon exclusivement, les travaux écrits dans leur propre langue. Il s'ensuit des particularismes nationaux, plus ou moins marqués, que je tenterai d'analyser.

CHAPITRE II

LA DIAGENÈSE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE ALLEMANDE

L'influence de WALTHER s'est étendue largement et les recherches sur la diagenèse ont été et sont encore très actives en Allemagne. La figure 2 résume schématiquement les principales conceptions qui ont vu le jour dans ce pays pendant un demi-siècle. Elle permet de constater que la zone définie par WALTHER est finalement celle que retiennent les traités les plus récents, mais que cette fidélité à la definition première fait suite à de nombreuses péripéties dont je veux retracer l'essentiel.

La diagenèse subit ici le sort de nombreuses notions géologiques : elle se heurte à des problèmes de limites. Cherchant à préciser la notion, on la restreint du même coup et la zone de la diagenèse se trouve ainsi amputée soit de ses parties superficielles soit de ses niveaux les plus profonds.

I - OÙ COMMENCE LA DIAGENESE : OCEANOGRAPHES ET SEDIMENTOLOGISTES

1 - ANDREE (1909-1924)

Les recherches sur les sédiments récents pendant le premier quart du siècle sont dominées en Allemagne par la personnalité de K. ANDREE. Il propose dès 1909, suivant en cela WEINSCHENK (1902), de réduire la zone définie par WALTHER. Dans son cours inaugural à Marburg en 1911 il déclarera :

"...C'est pourquoi je préfère restreindre la diagenèse des sédiments aux changements moléculaires et chimiques que subit le matériau sédimenté sous l'influence du milieu dans lequel il s'est déposé ; elle peut s'exercer éventuellement encore après l'exondation de ce milieu sous l'effet des circulations d'eaux vadoses, tant que celles-ci ne renferment en solution d'autres éléments que ceux qui sont issus du sédiment lui-même."

ANDREE présente dans ce long article très documenté un état des recherches à cette époque. On ne disposait pas encore des données des forages profonds et on connaissait mal les transformations importantes qui peuvent affecter un sédiment en dehors de son milieu de formation, bien après qu'il l'ait quitté, malgré les pertinentes observations de LANG (1914). Mais quelques années plus tard, les progrès de la pétrographie sédimentaire inciteront ANDREE (1924) à étendre vers le bas la zone de diagenèse et à la mettre en relation de continuité avec celle du métamorphisme.

2 - L'halmyrolyse de HUMMEL (1922)

Etudiant la genèse de la glauconie et des oolites ferrugineuses HUMMEL est amené à définir des phénomènes d'altération superficielle à la surface des sédiments fraîchement déposés. Il crée pour eux un mot nouveau "halmyrolyse" qui aura la bonne fortune de ne pas tomber complètement dans l'oubli.

"Je désigne par halmyrolyse les phénomènes comparables aux altérations météoriques, mais qui se déroulent à la limite de la lithosphère et de l'hydrosphère marine".

"L'halmyrolyse s'exerce sous l'influence des eaux marines libres ; je voudrais restreindre la notion de diagenèse aux changements qui s'accomplissent sous l'influence des solutions vadoses dans le sédiment qui vient

de se former... Les deux processus, halmyrolyse et diagenèse, n'ont naturellement pas entre eux de limite précise."

Ces définitions seront adoptées par WETZEL (1923) dans sa "Sedimentpetrographie".

3 - La metharmose de KESSLER (1922)

C'est une réaction contre la position des sédimentologistes, d'ANDREE en particulier, qui, en restreignant la diagenèse aux transformations dans le fond même du bassin, laissent un "no man's land" entre diagenèse et métamorphisme. KESSLER veut un mot pour désigner l'ensemble des aventures que peut rencontrer un sédiment : la metharmose. La diagenèse n'est qu'une de celles-la. Pour les autres, KESSLER propose une terminologie abusive qui n'aura, bien sûr, aucun écho. La définition d'une "zone de methidryse" par FRITSCH (1966) est un exemple récent de néologisme voué à l'échec. (fig. 2).

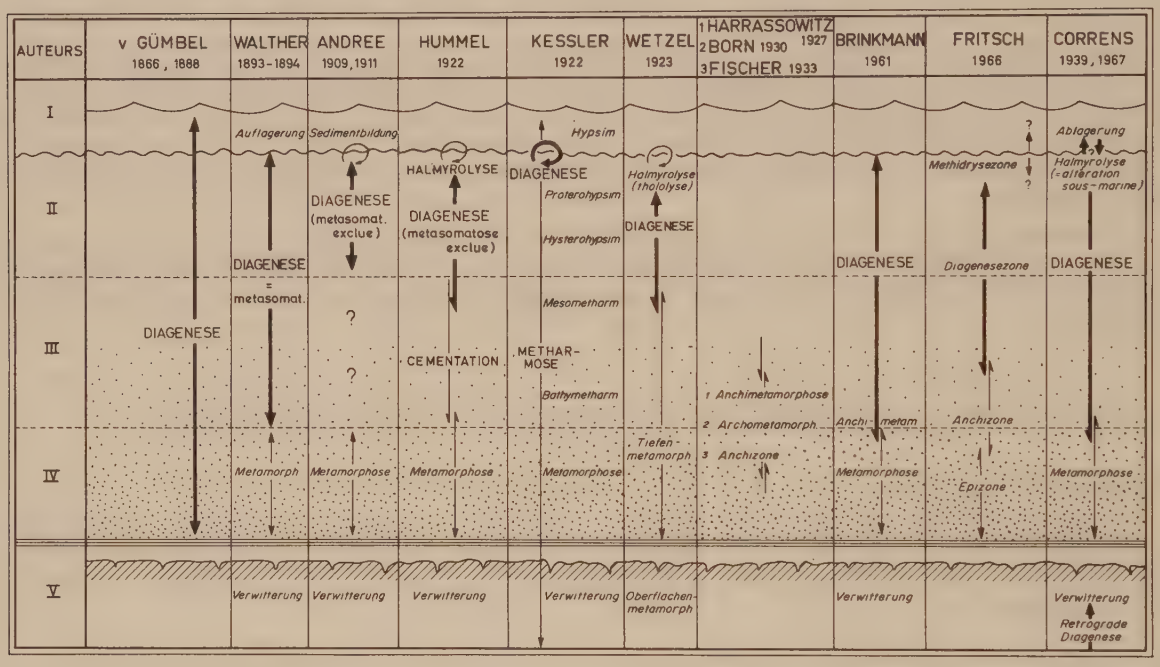


Fig. 2 - La diagenèse dans la nomenclature allemande.

I - Les particules détritiques sont encore en mouvement dans l'eau.

II - Les particules sont immobilisées dans un sédiment riche en eau, mais isolées du milieu de sédimentation.

III - Le sédiment est devenu une roche plus ou moins compacte.

IV - La série sédimentaire se trouve placée dans des conditions de métamorphisme général.

V - La série sédimentaire se trouve ramenée dans des conditions de décompression et de lessivage qui sont celles de l'affleurement.

En réalité, les parties II et III représentent des épaisseurs de sédiment très inégales, des dizaines de mètres pour la partie II, des centaines voire des milliers de mètres pour la partie III.

Le succès relatif de HUMMEL et l'échec de KESSLER sont symptomatiques. Un mot créé pour désigner des phénomènes précis, réels, mais encore peu explorés, a toute chance de durer ; un mot destiné à réunir abstraitement des phénomènes très divers sans lien évident est condamné d'avance, surtout lorsqu'il prétend se substituer à un autre, celui de diagenèse, qui malgré ses vicissitudes, a déjà pris sa place dans le vocabulaire géologique.

4 - C. W. CORRENS

CORRENS est l'héritier des premiers océanographes allemands. Participant à l'expédition du "Meteor" de 1925 à 1927, il a cherché les traces de la diagenèse dans les carottes des sédiments récents. L'étude des minéraux argileux, en particulier, l'a amené à poser les problèmes de genèse et de diagenèse. C'est ainsi que pour des raisons scientifiques d'une part, et aussi d'autre part à cause de la personnalité de l'auteur, le point de vue de CORRENS a fait autorité en Allemagne, et souvent hors d'Allemagne, en matière de diagenèse. CORRENS est resté fidèle à la définition de WALTHER, définition large et souple qu'il a toujours défendue dans ses publications successives (1939, 1948, 1949, 1950, 1967)

Les trois frontières schématisées sur la fig. 1 ont été reconnues par CORRENS dès 1939. Pour lui la continuité entre diagenèse et métamorphisme est parfaite ; elle est encore assez bonne entre diagenèse et altération superficielle par l'intermédiaire de la "diagenèse régressive". En revanche CORRENS reconnaît que l'interface eau libre-sédiment représente une frontière physico-chimique et biochimique importante. Il n'exclut pas la possibilité d'un remaniement de la couche superficielle du sédiment par le milieu (halmyrolyse). Mais c'est après l'enfouissement seulement que commence la diagenèse. De très nombreux auteurs se sont référés à la définition donnée par CORRENS en 1950. Elle a été reprise récemment en des termes très voisins (CORRENS, 1967, p. 172-173) et pose clairement le problème des limites (fig. 1) :

Limite I "Je voudrais proposer de désigner par altération sous-marine le lessivage du sédiment par l'eau de mer, et par diagenèse les changements qui s'opèrent dans un sédiment que l'eau de mer ne parcourt plus."

Limite II "On n'est pas encore parvenu à déterminer pour la diagenèse des degrés de transformation d'une valeur générale, liés à la température et à la pression, ainsi qu'on l'a fait depuis longtemps déjà pour le métamorphisme. C'est pourquoi il ne me paraît pas avantageux de développer la notion d'anchimétamorphisme proposée par HARRASSOWITZ en 1927. Je distinguerai par la suite les changements diagenétiques précoces et tardifs. Ces termes se rapportent seulement à la durée qui les sépare de la sédimentation, et non pas à leur intensité..."

Limite III : "Nous voulons déterminer ainsi la frontière entre diagenèse et altération météorique : l'altération météorique désigne les phénomènes qui s'exercent à proximité immédiate de la surface du sol, tandis qu'appartiennent à la diagenèse les changements induits par des solutions issues de la surface mais exerçant leur action plus profondément... Nous devons tenir compte du fait que des sédiments, qui subissent d'abord des modifications diagénétiques par enfouissement, peuvent être ensuite transformés par remontée à la surface. Il y a donc dans la diagenèse des phénomènes regressifs."

II - OÙ FINIT LA DIAGENESE : PETROGRAPHES ET MINERALOGISTES

Le passage d'une diagenèse poussée à un léger métamorphisme a toujours été admis implicitement depuis WALTHER. On le trouve explicité par GRUBENMANN et NIGGLI (1924) dans leur traité classique lorsqu'ils écrivent à propos des différents types de métamorphisme :

"... les phénoménes, qu'on regroupe dans les concepts de diagenèse et de cimentation, doivent être dans leur ensemble exclus du métamorphisme, encore que des termes de passage rendent leur séparation très difficile."

HARRASSOWITZ (1927, 1928) introduit un mot nouveau pour désigner cette zone de passage:

"Dans des conditions de pression et de température qui se situent entre celles de la surface et celles du véritable métamorphisme, s'accomplissent des transformations dans la constitution minéralogique des roches qui les acheminent vers le métamorphisme. Je les nomme "anchimétamorphisme"..."

HARRASSOWITZ n'apporte d'ailleurs aucune connaissance nouvelle à cette zone d'anchimétamorphisme. Il faut attendre les données des forages profonds pour mettre en lumière les effets d'une diagenèse poussée.

Ce néologisme (de ἀγχι = proche de) sera repris par FISCHER (1933). Plus heureux que celui de BORN (1930) ; l'"archométamorphisme", il sera tiré de l'oubli par BRINKMANN (1961), KUBLER (1964) et FRITSCH (1966). C'est un terme commode pour désigner ces "zones de passage" qu'évoquent GRUBENMANN et NIGGLI, en l'absence de zéolites. Je l'utiliserai dans la suite de ce travail, suivant en cela l'usage qui s'est répandu dans la recherche pétrolière française sous l'influence de KUBLER.

1 - Les données des forages profonds

Les recherches pétrolières ont fait considérablement progresser les connaissances sur l'évolution diagénétique des vieilles séries. Il s'agit pour le pétrolier de préciser les deux points suivants :

- la série en question n'a pas subi une diagenèse trop poussée ; ainsi les conditions de température auront permis aux hydrocarbures de subsister.
- la série a gardé une porosité suffisante pour pouvoir être un éventuel réservoir.

Les principaux travaux réalisés en Allemagne sur la diagenèse d'enfouissement dans les forages profonds sont ceux de FÜCHTBAUER et GOLDSCHMIDT (1963), SCHERP (1963), RICHWIEN, SCHUSTER, TEICHMÜLLER et al. (1963), SCHMIDT (1965), HEDEMANN et TEICHMÜLLER (1966), MÜLLER (1967). Certains d'entre eux seront repris plus loin à propos de la diagenèse des minéraux argileux.

Les questions relatives à la compaction des sédiments et aux solutions interstitielles dans la diagenèse ont été traitées par VON ENGELHARDT (1960, 1967).

2 - La pétrographie des charbons et des minerais

Les phénomènes diagénétiques intéressent tout particulièrement le métallogéniste. La notion de diagenèse vient interférer chez eux avec le couple classique syngenèse-épigenèse, au sens métallogénique de ces termes. Une revue détaillée de cet aspect des choses est donnée par TAUPITZ (1954) qui insiste, lui aussi, sur le passage progressif et continu au métamorphisme.

La pétrographie des charbons apporte des données très particulières. On sait que les charbons sont, après les sels, les roches les plus sensibles au métamorphisme. Leurs transformations chimiques et texturales commencent très tôt et on parle en pétrographie houillère de "métamorphisme" des charbons bien avant les moindres manifestations d'un quelconque métamorphisme régional. Les recherches ont été particulièrement poussées en Allemagne par TEICHMÜLLER (1954, 1967, 1968) qui précise le sens particulier donné à ce mot de "métamorphisme" par les géologues du charbon :

"Les charbons présentent de telles différences de composition et de structure avec la tourbe, qu'on doit les qualifier de "métamorphiques", quand bien même le contexte lithologique ne révèlerait aucune trace de métamorphisme.

Au demeurant la frontière entre diagenèse et métamorphisme est floue dans les charbons comme ailleurs, bien entendu. Il est de règle de ranger encore dans la diagenèse la déshydratation des charbons au stade des lignites."

La pétrographie des roches salines utilise également le terme de "métamorphisme" pour désigner les recristallisations diagénétiques (BORCHERT, 1969).

Il faut connaître ces particularités de vocabulaire, liées à une spécialité, si on veut éviter de grosses erreurs d'interprétation à la lecture de certains résultats.

3 - L'étude des paragenèses et la pétrographie expérimentale

Des tentatives ont été faites pour cerner les conditions physico-chimiques de la diagenèse et pour en fixer les limites. Alors que les travaux cités jusqu'ici représentaient une approche par le haut, à partir de la zone sédimentaire, on peut observer maintenant la démarche inverse. Des pétrographes du métamorphisme appliquent leurs connaissances et leurs techniques à la zone inférieure de la diagenèse.

C'est d'abord la tentative faite par SCHÜLLER (1961) pour caractériser et différencier les processus diagénétiques et métamorphiques.

C'est ensuite et surtout WINKLER (1964, 1965, 1968) par qui le passage diagenèse-métamorphisme est longuement argumenté.

"Le métamorphisme a commencé, c'est-à-dire que le domaine de la diagenèse a été dépassé, lorsqu'il se forme des associations minérales, dans certaines conditions de P et T, qui ne peuvent pas apparaître dans le domaine sédimentaire ; ou encore lorsqu'une association minéralogique spécifiquement sédimentaire disparaît. Le faciès zéolitique représente ce degré du métamorphisme pour la température la moins élevée..."

Il ne s'agit pas de n'importe quelle zéolite, car certaines peuvent prendre naissance en milieu sédimentaire (phillipsite, analcime, heulandite, clinoptilolite...). C'est la laumontite qui représente le premier minéral de métamorphisme (WINKLER, 1965, 1968).

La zone inférieure de diagenèse a fait l'objet de recherches expérimentales (ALTHAUS et JOHANNES, 1969) sur les réactions entre silicates et solutions chlorurées sodiques. Par ailleurs, l'étude des réactions minéralogiques et des faciès au sens d'Eskola a été tentée aussi pour les zones supérieures de la diagenèse (STEINIKE, 1966). Cet essai se rapporte aux roches argileuses détritiques. Il reste très théorique, mais il représente une nouvelle manière d'aborder les problèmes de la pétrographie sédimentaire et présente comme tel son intérêt.

III - CONCLUSION

Les recherches allemandes dans le domaine de la diagenèse lancées par WALTHER, illustrées par ANDREE pour les sédiments récents, ont été particulièrement poussées dans trois directions :

- les transformations en relation avec l'enfouissement le long des forages profonds
- l'évolution pétrographique des charbons
- la pétrologie expérimentale.

Ces recherches si diverses ont été dominées par la personnalité de CORRENS grâce à qui une parfaite unité s'est fait jour dans le sens à donner au concept de "diagenèse".

CHAPITRE III

LES TRAVAUX RUSSES DANS LE DOMAINE DE LA DIAGENÈSE

Les géologues russes du siècle dernier, tout comme les géologues occidentaux, avaient fait des observations relatives aux transformations post-sédimentaires et non métamorphiques. Aucun d'eux n'est cité par WALTHER dans son premier exposé de la notion de diagenèse. Il y a pourtant des travaux très remarquables, malgré leur ancienneté, tels ceux de BRYKOV (1838), rapportés par BOUCHINSKY (1954). Etudiant la formation des silex de la craie, BRYKOV imagine une succession de phénomènes qui, sans être groupés sous le nom de diagenèse, bien sûr, présentent déjà les caractères de cette dernière, telle que l'a définie WALTHER quarante cinq ans plus tard.

Au début du siècle, à l'époque des grands traités classiques (ROSENBUSCH, VAN HISE, HAUG, etc...), la Russie n'offre aucun travail de synthèse. Des ouvrages fondamentaux paraîtront plus tard dans l'entre-deux-guerres, et puis ce sera de nouveau le silence pendant la deuxième guerre mondiale.

A partir de 1950 nous arrivent de nouvelles publications sur les phénomènes de diagenèse, et c'est alors qu'une foule de travaux, dont le nombre s'est accru d'année en année, voit le jour au cours des quinze dernières années. Les chercheurs soviétiques se sont ainsi tout récemment placés au premier rang dans ce chapitre de la géologie. Les raisons de cet effort et de cette réussite sont intéressantes à analyser. On peut les ramener à trois :

1 - On sait que l'Union Soviétique a mis en oeuvre des moyens assez considérables pour dresser l'inventaire de ses richesses minérales, conditions de son indépendance économique. Les recherches de pétrole, de charbon, de minerais et d'eau ont été poussées activement avec le concours d'un nombre considérable de prospecteurs et de géologues.

2 - Cette richesse en hommes s'accompagnait de moyens techniques assez simples : peu de spectromètres de masse mais beaucoup de microscopes. Des milliers de lames minces ont été étudiées et on sait que le microscope est l'outil essentiel pour la reconstitution des étapes de la diagenèse (dissolutions, recristallisations, compactions etc...).

3 - La "plate-forme russe", enfin, avec son immense couverture paléozoïque non plissée, offrait un matériel idéal pour l'étude du vieillissement des séries en dehors du métamorphisme et des tensions des zones orogéniques.

Tout cela contribue à expliquer les succès obtenus par les géologues soviétiques dans l'étude de la diagenèse. Je passerai en revue les principales acquisitions en retenant surtout les éléments qu'elles apportent à la "notion" de diagenèse (fig. 3).

I - LES PREMIERS TRAITES MODERNES : FERSMAN, SCHVETSOV, PUSTOVALOV

La "Géochimie de la Russie", de FERSMAN, a paru en trois gros volumes en 1922, 1934, et 1937. Le phénomène sédimentaire est décrit dans le premier de ces volumes et les étapes suivantes y sont définies :

- la syngenèse, formation du dépôt meuble ou étape d'accumulation
- la diagenèse, ou somme des processus de formation des roches à partir des boues, dans le cadre du bassin sédimentaire. A la diagenèse, se rattachent selon FERSMAN les phénomènes suivants :

. recristallisation des éléments détritiques,
. essorage de l'eau d'imbibition,
. formation des nodules et des concrétions,
. absorption du magnésium de l'eau de mer,
. carbonisation de la substance organique.

- la catagenèse, ou évolution ultérieure du sédiment, loin des conditions du bassin qui lui a donné naissance.

- Enfin des places à part sont données aux phénomènes de métamorphisme et d'altération superficielle. Cette dernière est déjà désignée sous le nom d'hypergenèse, qui persistera jusqu'à nos jours.

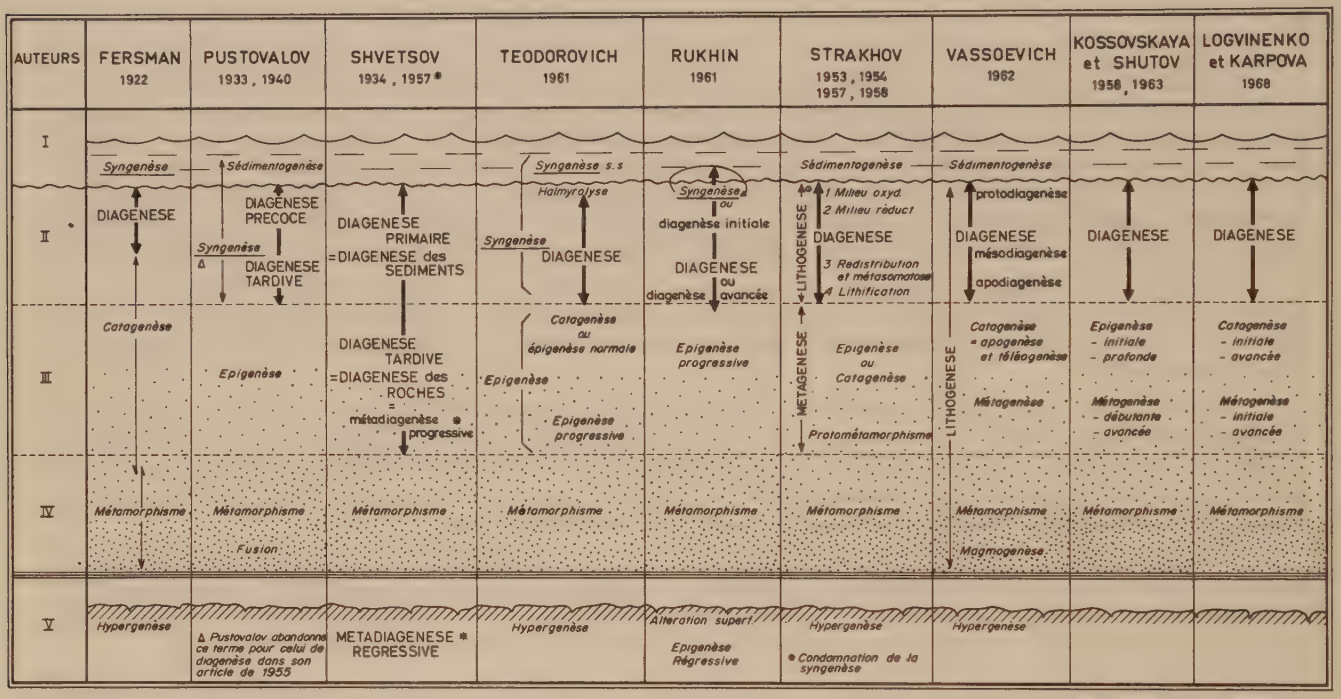


Fig. 3 - La diagenèse dans la nomenclature russe.

I - Les particules détritiques sont encore en mouvement dans l'eau.
II - Les particules sont immobilisées dans un sédiment riche en eau, mais isolées du milieu de sédimentation.

III - Le sédiment est devenu une roche plus ou moins compacte.

IV - La série sédimentaire se trouve placée dans des conditions de métamorphisme général.

V - La série sédimentaire se trouve ramenée dans des conditions de décompression et de lessivage qui sont celles de l'affleurement.

En réalité, les parties II et III représentent des épaisseurs de sédiment très inégales, des dizaines de mètres pour la partie II, des centaines voire des milliers de mètres pour la partie III.

Avec SCHVETSOV (1934) paraît le premier traité russe de pétrographie sédimentaire. Une deuxième édition sera donnée en 1948 par l'auteur, suivie d'une réimpression en 1958. La diagenèse est comprise ici au sens large qui lui donna WALTHER mais SCHVETSOV propose une distinction entre la transformation des sédiments en roches (diagenèse primaire), et celle des roches elles-mêmes (diagenèse tardive). Dans un article de 1957, il rejette le terme courant d'épigenèse pour le remplacer par celui de métadiagenèse. La métadiagenèse sera "progressive" ou "régressive" suivant que les roches seront soumises à des phénomènes de recristallisation en profondeur

ou d'altération en surface. Cette proposition ne sera pas suivie et le terme compliqué de métadiagenèse bientôt abandonné.

Le second traité russe de pétrographie sédimentaire est dû à PUSTOVALOV (1940). En 1933 déjà, décrivant ce qu'il a appelé les "faciès géochimiques", il étendait la zone de "syngenèse" à l'ensemble des sédiments non consolidés, englobant ainsi la diagenèse de FERSMAN et une partie de celle de WALTHER. La zone d'"épigenèse" était celle, plus profonde, des transformations des roches déjà lithifiées. PUSTOVALOV reprend le couple "syngenèse-épigenèse" dans le traité de 1940, et critique le terme de diagenèse à cause de l'imprécision qu'il présente déjà. Il propose d'établir au moins la distinction entre diagenèse précoce et diagenèse tardive. En 1955 enfin, dans son article à la Geologische Rundschau, il abandonne le terme de syngenèse qui fait l'objet de vives discussions en U.R.S.S., comme on le verra plus loin.

Ainsi donc, au lendemain de la deuxième guerre mondiale, la notion de diagenèse se présentait-elle sous des jours assez différents (fig. 3). Rétrécie par FERSMAN aux dimensions du bassin sédimentaire, étendue par SCHVETSOV à l'ensemble des transformations non métamorphiques, incluse par PUSTOVALOV dans une "zone de syngenèse", elle avait tout ce qu'il faut pour alimenter les discussions et susciter les recherches.

II - LES TRAVAUX RECENTS

L'imprécision dont il vient d'être question s'est traduite par des tendances qui, pour l'observateur étranger, se rattachent à deux pôles représentés par RUKHIN et TEODOROVICH d'une part, STRAKHOV et VASSOEVICH d'autre part. Pour comprendre les conceptions de ces différents auteurs, il faut connaître les principaux travaux sur lesquels elles s'appuient.

Il y a plusieurs façons de faire de la sédimentologie. Entre autres, celle qui consiste à étudier les phénomènes en action dans les sédiments récents, et celle qui recherche dans les sédiments anciens les phénomènes qui furent en cause. Ainsi ont pris naissance deux groupes de travaux très différents dont nous donnons un bref aperçu.

1 - Les sédiments récents

Les travaux sont innombrables et difficiles d'accès puisqu'ils sont en langue russe. Deux d'entre eux, cependant, ont été traduits et présentent une synthèse des connaissances soviétiques sur deux points particuliers.

a) La diagenèse de la matière organique

BORDOVSKIY (1965) fait une revue très détaillée de l'évolution de la matière organique dans les milieux de sédimentation et les sédiments frais. Il n'est pas question de résumer ici la somme considérable des données modernes sur les sources de matières organiques, leur mode de transport et d'accumulation, les transformations qu'elles subissent. Des centaines de travaux russes sont cités. Il faut noter seulement que le mot diagenèse y désigne des processus se situant après l'accumulation du sédiment. Il est pris dans un sens assez large, de sorte qu'il semble nécessaire à BORDOVSKIY de préciser "diagenèse précoce" (early stages of diagenesis) pour décrire les phénomènes où les facteurs biologiques jouent le rôle principal.

b) Le rôle de l'eau interstitielle dans la diagenèse : TAGEEVA et TIKHOMIROVA (1962)

Ici encore, dans l'esprit des auteurs, ce n'est qu'à partir du moment où le dépôt est formé, isolé du milieu de sédimentation par les couches suivantes, que la diagenèse commence à s'exercer. L'étude des dépôts récents de la mer Caspienne leur permet de distinguer deux étapes dans cette diagenèse :

- une diagenèse précoce (ou ancienne) dont la durée serait de 10 000 ans environ, dont le facteur principal serait la pression, affectant des dépôts peu consolidés dont les eaux sulfato-sodiques ou chloruro-magnésiennes sont peu concentrées.

- une diagenèse tardive (donc plus récente), qui s'étendrait sur un million d'années, ayant pour effet de concentrer des solutions chloruro-calciques dans un sédiment déjà compact.

Les chercheurs qui s'intéressent aux phénomènes récents s'accordent, nous l'avons vu, à faire débuter la zone de la diagenèse après la mise en place du sédiment. De nombreux travaux ont montré qu'un sédiment frais, sitôt déposé, acquérait une grande indépendance vis à vis du milieu marin qui lui a donné naissance (ZOBELL, 1946; KRUMBEIN et GARRELS, 1952; EMERY et RITTENBERG, 1952; DEBYSER, 1952, 1961). Eh, pH, concentration des sels y varient considérablement sur quelques dizaines de centimètres. On peut donc penser qu'il n'y a plus aucun échange entre la mer et le sédiment et qu'une coupure essentielle se place entre la sédimentogenèse d'une part et la diagenèse d'autre part. Tel n'est pas l'avis de tous les chercheurs russes et c'est la raison des divergences que je signalais plus haut.

c) La notion de "syngenèse" : ROUKHINE (1961), TEODOROVICH (1961)

On a expliqué comment ce terme, introduit en Russie dans la sédimentologie par FERSMAN (1922) et repris par PUSTOVALOV (1933, 1940) fut finalement abandonné par ce dernier (1955).

ROUKHINE le reprend à son compte, désignant ainsi les phénomènes d'échange entre le milieu de sédimentation et le sédiment frais. C'est une sorte de diagenèse initiale où la mer jouerait un certain rôle. Une telle opinion, vivement combattue par certains en Union Soviétique, pour les raisons qui ont été dites quelques lignes plus haut, est reprise la même année sous une forme un peu différente.

TEODOROVICH étend la notion de syngenèse à l'ensemble des transformations subies par le sédiment avant sa compaction. Une syngenèse sensu stricto, dérivée de celle de FERSMAN, désigne les phénomènes ayant lieu dans l'eau du bassin lui-même. Les échanges entre milieu et sédiment (c'est-à-dire la syngenèse de ROUKHINE) sont désignés par lui sous le nom d'halmyrolyse créé par HUMMEL en 1922. Vient enfin la diagenèse qui s'exerce dans un domaine où l'eau de la mer ou celle du lac n'intervient plus.

Les schémas de ROUKHINE et TEODOROVICH sont compliqués. Ils impliquent en outre des phénomènes d'échange milieu-sédiment dont la réalité est mise en cause par les travaux récents des sédimentologistes.

d) La limite "sédimentogenèse-diagenèse" : STRAKHOV (1953 à 1958), VASSOEVICH (1962)

STRAKHOV a exposé dans de nombreux articles sa façon de concevoir la diagenèse. Sa première publication d'ensemble sur le sujet, en 1953, le place d'emblée comme un adversaire de la syngenèse. Tenant compte des travaux russes et américains cités plus haut il donne à la limite sédimentogenèse-diagenèse la valeur d'un véritable changement d'état. Une couche de sédiment, sitôt formée, est recouverte d'une nouvelle pellicule de sédiment et ainsi isolée du milieu de sédimentation marin ou lacustre. Il se crée donc deux milieux contigus très différents qui vont naturellement induire des néoformations ou des transformations tout à fait différentes, dont la détermination sera sans doute difficile dans une vieille roche, mais dont la disparité d'origine n'en demeure pas moins vraie. En outre, le terme de syngenèse appartient de longue date aux métallogénistes pour lesquels il s'oppose à épigenèse (AMSTUTZ, 1959, 1964).

La "syngenèse" est donc condamnée par STRAKHOV qui n'apportera ensuite que peu de modifications à son schéma de 1953. Il le reprendra maintes fois, notamment dans son traité de 1957 et dans son article aux Eclogae de 1958. L'indépendance que prend immédiatement un sédiment par rapport à son milieu de sédimentation est partout soulignée et ainsi se trouve rigoureusement définie, en théorie tout au moins, la limite entre sédimentogenèse et diagenèse.

La limite entre diagenèse et épigenèse est plus floue puisque la compaction du sédiment est difficile à replacer dans le temps. STRAKHOV expose en 1958 une idée intéressante à ce sujet. Un sédiment frais, fait de particules détritiques, de minéraux néoformés, de solutions diverses est un système plus ou moins clos qui possède un "déséquilibre interne", fruit de son hétérogénéité. Le stade de la diagenèse serait précisement la réalisation d'un équilibre interne par le jeu des dissolutions, recristallisations, transformations, néoformations, ségrégrations, circulations etc... L'épigenèse commencerait, elle, lorsque des conditions "externes", par exemple l'enfouissement, auraient créé un nouveau déséquilibre, et, partant, de nouvelles réactions. L'idée est séduisante, mais très théorique ; son utilisation pratique dans les interprétations sédimentologiques semble bien difficile.

Un système voisin de celui de STRAKHOV a été présenté récemment par VASSOEVICH (1962). Il a le mérite de séparer sédimentogenèse et diagenèse, mais l'inconvénient de passer sous silence le mot épigenèse d'un usage si courant pourtant pour désigner les transformations postérieu-

res à la compaction de la roche et, bien sûr, en dehors de toute altération superficielle et de tout métamorphisme. En outre, les subdivisions, multipliées à l'excès, ne retiendront sans doute pas l'attention des pétrographes à la recherche d'un cadre simple pour y inscrire leurs observations.

2 - Les sédiments anciens

Le mérite de STRAKHOV est d'avoir su présenter de l'évolution post-sédimentaire un schéma large et simple tenant compte de travaux très divers. La zone d'épigenèse, qu'il a personnellement moins étudiée que celle de la diagenèse, a fait l'objet de nombreux et importants travaux dont les derniers sont très récents. Il faut citer particulièrement ceux de KOSSOVSKAIA et SHUTOV (1957, 1958, 1963), KOSSOVSKAIA (1962), SHUTOV et DOLMATOVA (1961), KOPELIOVICH (1965), SIMANOVICH (1966), LOGVINENKO et KARPOVA (1968).

Les zones d'épigenèse de KOSSOVSKAIA et SHUTOV sont bien connues depuis qu'elles ont été présentées au V° Congrès International de Sédimentologie à Lausanne (Tableau I). Les auteurs les ont prolongées par une zone de "métagenèse" utilisant malheureusement un mot déjà employé par STRAKHOV dans un sens un peu différent (fig. 3).

Par delà les errements du vocabulaire, il est intéressant de voir les progrès réellement accomplis. Le tableau I présente une zonéographie établie en 1958 et qui, dix ans plus tard, a gardé le même cadre mais s'est enrichi de données plus précises. Les données du microscope ont été complétées par celles du diffractomètre. On y reviendra plus loin à propos des minéraux argileux.

Tableau I

Zonéographie stadiale post-diagénétique selon KOSSOVSKAIA et SHUTOV (1958) et LOGVINENKO et KARPOVA (1968)

Petrographie	Stades	Stades	Minéralogie
ciment argileux intact	Epigenèse débutante	Catagenèse initiale	Montmorillonite, interstratifiés, illite 1 Md Kaolinite, chlorite Fe (β = 90°) Minéraux résiduels instables (biotite hydratée, kaolinisée)
ciment argileux transformé	Epigenèse profonde	Catagenèse avancée	Disparition de la montmorillonite et des interstratifiés Kaolinite stable, illite 1 M, chlorite Fe-Mg Microstructures de pression et dissolution dans les grès
ciment à illite et chlorite structures quartzitiques	Métagenèse initiale	Métagenèse initiale	Disparition partielle de la kaolinite. Illite 2M, chlorite Fe-Mg (β = 97°) Métasomatose Na (illites paragonitiques) Microstructures de pression et de dissolution générales
ciment à mica et chlorite structures en "épines" subfaciès à muscovite et chlorite	Métagenèse avancée Métamorphisme	Métagenèse avancée Métamorphisme	Muscovite 2 M Chlorite Fe-Mg (β = 97°) Métasomatose alcaline intense, muscovitisation, paragonitisation Structures de ségrégation.
KOSSOVSKAIA et SHUTOV (1958)		LOGVINENKO et KARPOVA (1968)	

III - CONCLUSION

Cette brève revue permet de dégager quelques faits essentiels.

1 - Les géologues soviétiques ont créé pour leur propre usage un vocabulaire particulier. Les raisons de ce particularisme sont à rechercher dans la barrière qui sépare malgré tout les langues slaves des langues occidentales, et aussi la nécessité de nommer les multiples stades mis en évidence par l'"analyse stadiale" que les pétrographes russes ont poussée si loin.

2 - Le terme de diagenèse a été très tôt restreint à la phase initiale des transformations post-sédimentaires, sous l'influence de FERSMAN. Malgré la tentative de SCHVETSOV, il a toujours gardé ce sens restreint sur lequel tous les géologues soviétiques s'accordent maintenant. (fig. 3). Il est nécessaire que le lecteur occidental en soit averti.

3 - La nomenclature des stades d'évolution post-sédimentaire est particulièrement compliquée en Union Soviétique. Certains termes sont employés couramment avec un sens précis qu'il faut connaître tels, épigenèse, catagenèse, métagenèse, hypergenèse, etc... (fig. 3).

4 - Cette richesse du vocabulaire traduit d'ailleurs une grande richesse d'observations et une masse de résultats dont j'ai évoqué plus haut les raisons (p. 19).

CHAPITRE IV

LA DIAGENÈSE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE DE LANGUE FRANÇAISE

Les pétrographes et sédimentologistes français ont porté récemment un intérêt marqué aux phénomènes de diagenèse. C'est ainsi que l'"Association des Sédimentologistes Français", de création récente, comprend un groupe de travail qui porte le nom de "Géochimie et diagenèse des sédiments". Ce regain d'intérêt est tout nouveau. Il fait suite à un demi-siècle d'oubli, bien que le traité classique de HAUG ait présenté en 1907 au public français la nouvelle notion de diagenèse. Cette carence s'explique : c'est celle de la pétrographie sédimentaire dans son ensemble en France. Cette discipline a été dominée par le grand Lucien CAYEUX, chercheur solitaire, aux idées originales, qui n'a guère fait école. Son apport est considérable, mais il est unique. Les années récentes voient au contraire la pétrographie sédimentaire prendre une place importante dans les recherches géologiques françaises. Cela se fait par trois voies : celle de la minéralogie et de la géochimie des argiles, celle de l'exploration pétrolière, et celle de l'océanographie.

Nous verrons donc successivement la position de HAUG, les idées de CAYEUX et enfin les travaux récents.

I - LE TRAITE DE HAUG (1907)

HAUG consacre un chapitre entier à la diagenèse, mais il en réduit les dimensions. Il la présente comme la somme des "transformations... qui ont pour théâtre le fond même des eaux et qui se produisent immédiatement après la précipitation ; elles sont d'ordre chimique et peuvent avoir lieu avec l'intervention ou sans l'intervention des micro-organismes".

Et il conclue :

"En résumé, le fond de la mer et des lacs est le théâtre de phénomènes chimiques qui peuvent modifier complètement la nature des sédiments, immédiatement après leur dépôt".

La restriction apportée par HAUG à la définition de WALTHER est double :

a - La diagenèse se déroule immédiatement après le dépôt. C'est un phénomène rapide, presque contemporain de la sédimentation.

b - La diagenèse est un ensemble de processus chimiques. Il n'est pas fait mention des modifications physiques subies par le sédiment : essorage, tassement, compaction, changements de structure, etc... HAUG ne retient que les phénomènes suivants : dissolution, recristallisation, formation de concrétions, dolomitisation, décomposition des silicates et de la matière animale.

On peut regretter ces restrictions. Ce sont elles, peut-être, qui sont à l'origine des réticences que les autres français ont longtemps marquées vis-à-vis de cette notion. Alors que la diagenèse a pris sa place dans le cycle géologique pour la plupart des géologues, les français en resteront longtemps aux quatre grandes étapes, érosion - transport - sédimentation - métamorphisme, oubliant qu'entre la sédimentation et un métamorphisme éventuel se place toujours une diagenèse dont les conséquences sont plus ou moins graves mais jamais nulles (LAPPARENT, 1906; COLLET, 1908; LAPPARENT, 1923; MILLOT, 1949).

En fin de compte, HAUG aura eu le mérite d'introduire dans le langage géologique français le terme de diagenèse. Mais il l'aura fait de manière si restrictive que le mot sera oublié pen-

dant cinquante ans. Les pétrographes français de l'actuelle génération prendront alors brusquement conscience de l'importance d'une zone où certaines écoles étrangères ont mis en évidence des phénomènes de grande ampleur. Nous indiquerons leurs travaux après avoir étudié le point de vue si particulier de CAYEUX.

II - L'INFLUENCE DE LUCIEN CAYEUX

Dans son volumineux mémoire de 1897, CAYEUX étudie deux types de sédiments : les dépôts siliceux secondaires et tertiaires du bassin de Paris et de la Belgique et la craie du bassin de Paris. Il n'est pas sans évoquer la transformation qui, des boues originelles, a fait le sédiment qu'il étudie, mais il ignore la notion de diagenèse, définie pourtant depuis trois ans par WALTHER. CAYEUX parle de "métamorphose" des boues siliceuses en gaizes (p. 78 et 149) et des "modifications subies par la craie dans sa composition organique après son dépôt" (p. 472 à 484).

Le travail magistral sur les minerais de fer oolitiques de France, paru en 1922, décrit des phénomènes diagénétiques du plus grand intérêt. Les remplacements minéralogiques successifs dans les oolites, les remaniements de celles-ci, tout cela est décrit avec une précision et un soin remarquables. Le lecteur est dans l'admiration devant une analyse aussi poussée, mais il est stupéfait de lire que les transformations subies par les oolites après leur dépôt sont nommées par CAYEUX "métamorphisme général sous-marin", au mépris du vocabulaire classique. Il ignore délibérément le vocable de diagenèse, pourtant couramment employé à l'époque, et utilise celui de métamorphisme sans s'inquiéter de l'emploi habituel du mot et des confusions qu'il risque ainsi de créer. On lit dans son introduction (p. VII) :

> "La question des phénomènes de consolidation, notamment, occupe une telle place dans ce mémoire, que je serai fondé à lui donner le sous-titre suivant : contribution à l'étude du métamorphisme général".

Il est facile d'imaginer les confusions qu'un tel sous-titre aurait pu créer.

DÉVERIN, deux ans plus tard (1924), se plaint de la négligence apportée à la définition de la diagenèse, malgré la réalité des phénomènes que cette notion recouvre. Il préfère, à tout prendre, utiliser comme CAYEUX le mot de métamorphisme en lui donnant le sens très large proposé autrefois par VAN HISE (1904) et utilisé parfois par GRUBENMANN.

Le concept de diagenèse, sous sa forme déjà classique, est donc ignoré par CAYEUX. Une telle lacune ne surprend pas, d'ailleurs, quand on sait que la richesse de l'observation et de la description est associée chez lui à une grande avarice dans la bibliographie. Cette attitude de CAYEUX, travailleur infatigable mais isolé, qui n'a pris conseil que de lui-même, est peut-être à l'origine du silence de la pétrographie sédimentaire française entre les deux guerres, silence qui ne sera rompu que par les remarquables travaux de J. de LAPPARENT. Elle est responsable, en tous cas, de l'oubli chez nous du mot "diagenèse", qui ne fera sa réapparition dans l'enseignement classique que vers 1950. La lecture des ouvrages scolaires français et étrangers qu'il est impossible de citer tous, est très instructive à cet égard.

On sait qu'à la fin de sa vie, Lucien CAYEUX s'est attaché à l'une de ses hypothèses au point de l'ériger en théorie : la théorie des "causes actuelles" et des "causes anciennes" (CAYEUX, 1941). Les importantes différences qui séparent les sédiments actuels des roches sédimentaires, que tout le monde s'accorde à mettre sur le compte des phénomènes de diagenèse, sont pour lui l'expression des différences entre les conditions de sédimentation des temps géologiques et celles de la nature actuelle. Cette idée, née de l'observation exacte de la rapidité des phénomènes de consolidation dans différents types de sédiments, est naturellement inacceptable dans sa généralisation. Elle ne fut pas acceptée d'ailleurs, même chez les pétrographes français, auprès desquels la notion de diagenèse a acquis maintenant ses droits.

Le traité de FOURMARIER (1951) fait une large place aux phénomènes de diagenèse, mais l'auteur refuse ce terme pour lui substituer celui de "lapidification" ; c'est sans doute l'expression d'une méfiance, inexprimée d'ailleurs, devant les incertitudes du terme. Avec les traités de VATAN (1954, 1967), de LOMBARD (1956), de JUNG (1958), de TERMIER (1960), de MILLOT (1964), de BROUSSE (1968), la diagenèse retrouve dans la littérature française la place qu'elle avait perdue depuis HAUG (1907). Elle est prise au sens large du terme et considérée comme l'ensemble des phénomènes post-sédimentaires, non métamorphiques et non superficiels, sans qu'une attention particulière soit portée aux problèmes de limites. Elle est enfin reconnue comme une des étapes du grand cycle géologique.

III - LES TENDANCES ACTUELLES

Les recherches en cours sur les transformations diagénétiques se rattachent à trois domaines principaux.

1 - L'océanographie

En 1954 déjà, DEBYSER dressait un tableau des zones superficielles de la diagenèse, celles où les phénomènes biochimiques sont encore en cause. De nombreux chercheurs sont actuellement à l'étude de cette diagenèse précoce que les carottages dans les sédiments actuels permettent de reconstituer. Une revue de certains aspects (tassement, compaction, essorage,...) a été présentée récemment par OULIANOFF (1965).

2 - Les recherches pétrolières et houillères

Toutes deux disposent du matériel de choix que constituent les carottes de forage, et de moyens techniques puissants. L'exploration pétrolière nécessite une connaissance approfondie des milieux de genèse des huiles, et des caractéristiques pétrographiques des roches magasins ; or on sait l'importance que revêtent les phénomènes diagénétiques dans l'évolution de la matière organique d'une part, et la cimentation des sédiments poreux d'autre part. Une récente publication (TECHNIP, 1966) nous renseigne sur le sens attribué à la diagenèse dans la recherche pétrolière en France :

"Terme général désignant l'ensemble des phénomènes physico-chimiques et biochimiques qui déterminent la transformation d'un sédiment depuis le moment de son dépôt".

La géologie houillère apporte des résultats d'intérêt général par l'étude détaillée des roches associées au charbon (SCHEERE, 1963). Les recherches sur le charbon lui-même conduisent à employer le terme de "métamorphisme" pour des recristallisations indépendantes de tout métamorphisme (ALPERN, 1969). Nous avons déjà évoqué ce langage particulier aux pétrographes des charbons (p. 16).

3 - L'étude des argiles

Elle a pris une grande place dans la pétrographie sédimentaire française grâce aux travaux de Georges MILLOT. On analysera plus loin (p. 38 à 41) les données les plus récentes sur la diagenèse des argiles. Quant à la notion même de diagenèse, on mesurera la place qu'elle a enfin prise en France en comparant les deux définitions données par MILLOT à quinze ans de distance (1949, 1964). On lit en 1949 (p. 337) :

"si l'on appelle cycle géochimique la suite des opérations suivantes : altération, transport, sédimentation, métamorphisme et mise en place des massifs cristallins".

On peut lire plus tard, en 1964 (p. 89) :

"On appelle cycle géochimique la suite des évolutions au cours des étapes suivantes : altération, transport, sédimentation, diagenèse, métamorphisme et genèse des roches cristallines".

L'importance des phénomènes auxquels sont soumises les argiles dans la zone de la diagenèse est grande. Transformations positives et négatives (agradations et dégradations) et néoformations s'y produisent. C'est une zone vaste et complexe à laquelle MILLOT se garde de donner des limites trop précises, étant ainsi en parfait accord avec CORRENS (voir p. 15). Il écrit (1964, p. 414) :

"... la limite entre sédimentation et diagenèse est extrêmement floue. Les équilibres, qui peuvent se prendre rapidement, se réalisent pendant la sédimentation elle-même, d'autres tardent. Ensuite, le milieu diagénétique apporte ses propres changements, température, pression, essorage, lessivage des solutions variées, et prend son caractère particulier. Mais dans l'ensemble, les évènements qui se produisent au sein du sédiment par la suite, appartiennent à la diagenèse".

Il apparaît, en définitive, que la notion de diagenèse est communément admise et interprétée par les géologues d'expression française. Elle n'a pas fait l'objet des mêmes divergences d'opinion qu'en Allemagne ou en Union Soviétique. La raison en est simple : le terme de diagenèse avait disparu du langage géologique français pendant près d'un demi-siècle.

CHAPITRE V

LES AUTEURS DE LANGUE ANGLAISE

La notion de diagenèse, née en Allemagne, a eu quelque peine à s'imposer aux chercheurs de langue anglaise. C'est plus précisément le terme de diagenèse qui ne fut accepté qu'assez tard, bien après que de nombreux phénomènes diagénétiques fussent identifiés et décrits. On peut, en fait, distinguer quatre périodes dans l'évolution des idées et des mots :

- une période ancienne, antérieure à la première guerre mondiale où les transformations post-sédimentaires sont peu connues et mal interprétées,

- une période de transition, entre deux guerres, où de nombreuses évolutions sédimentaires sont décrites sans que la notion de WALTHER soit connue des auteurs,

- l'année 1932 où paraît le traité de TWENHOFEL, première référence américaine à la diagenèse, au sens européen du terme,

- enfin la période moderne, qui s'ouvre avec l'article de base de KRUMBEIN, et au cours de laquelle plusieurs tendances se dessinent.

I - LA PERIODE ANCIENNE : AVANT 1914

Il est bien certain que de nombreuses observations pétrographiques réalisées depuis les premiers temps de l'usage du microscope polarisant, c'est-à-dire le troisième tiers du dix-neuvième siècle, ont eu trait à des recristallisations post-sédimentaires. Les observateurs n'ont souvent pas su les interpréter comme telles et voir en elles l'une des étapes du grand cycle géologique. Il faudrait citer d'innombrables articles. Quatre d'entre eux me paraîssent particulièrement significatifs.

IRVING et VAN HISE (1884) ont présenté une étude magistrale sur l'accroissement secondaire des grains de quartz et de feldspath dans les grès. Ils apportent ainsi la preuve de cristallisations post-sédimentaires en dehors de tout métamorphisme, sans donner d'ailleurs à celles-ci aucun caractère de généralité.

En Grande Bretagne HUTCHINGS (1890) étudie les schistes ardoisiers. Sans faire appel à la notion de métamorphisme général, il envisage la transformation de ces sédiments détritiques après leur dépôt. Sans citer la diagenèse de von GÜMBEL il donne de nombreuses preuves de la recristallisation du matériel détritique. En particulier, la présence de rutile est interprétée comme le produit d'altération dans le sédiment des biotites détritiques dont on ne trouve plus trace.

Le volumineux traité de VAN HISE (1904) fait le point des connaissances de l'époque sur le métamorphisme. La notion de diagenèse y est curieusement absente alors qu'elle est entrée dans la littérature européenne depuis dix ans. Ce lien entre la surface de l'écorce terrestre et les zones profondes est négligé par VAN HISE qui, par simplification, donne une extension très large à la notion de métamorphisme : "any change of constitution in any kind of rock" (p. 32). Une telle définition, concernant des phénomènes aussi lointains que l'altération superficielle et le métamorphisme de contact ne devait pas avoir beaucoup d'avenir.

La classification des roches sédimentaires proposée par GRABAU (1904) exerça une influence assez durable, malgré son caractère théorique et la lourdeur de son vocabulaire. La diagenèse de WALTHER est mise à sa place (p. 236) : elle est appelée "diagenesis" (c'est la première fois que le mot est utilisé en anglais) ou encore "diagenism" ou "diagenic metamorphism". Elle représente le premier pas en direction des phénomènes de métamorphisme ("aethobalism" et "symphrattism"). Il est curieux de constater que, malgré le succès de la classification de GRABAU, le terme de diagenèse introduit avec elle se soit si peu imposé qu'il faille attendre plus d'un quart de siècle pour qu'il fasse sa réapparition dans la littérature anglaise.

II - LA PERIODE DE TRANSITION : ENTRE DEUX GUERRES

La conférence donnée par SCHUCHERT en 1920 signale de degré d'abandon dans lequel se trouve la notion allemande de diagenèse. Ce texte est malheureusement dépourvu de toute documentation et n'apporte aucun renseignement précis sur l'état d'avancement des recherches en pétrographie sédimentaire.

Les recherches se poursuivent cependant, et nous en donnerons deux exemples.

1 - La transformation des shales en slates

BRAMMAL (1921) en Grande Bretagne reprend les études de HUTCHINGS et pousse beaucoup plus loin l'analyse pétrographique et chimique de la série shales-cleaved slates-phyllites. Il tente d'établir la répartition des ions dans le système séricite-chlorite-quartz et suggère que les "reconstitution processes" qu'il décrit consistent en un nettoyage, une purification des réseaux cristallins. Mais l'auteur n'envisage pas les conditions géologiques d'une telle évolution. Il ne cherche pas à la placer par rapport à la notion de diagenèse, qu'il ne cite pas, pas plus qu'il ne cherche à évaluer le degré de métamorphisme atteint.

La même ignorance de la notion de diagenèse apparaît chez WILSON (1926) qui décrit l'évolution des shales au cours des phénomènes de "lithification" et d'"incipient metamorphism" : carbonisation des débris organiques, densité, dureté, fissilité, comportement dans l'eau, teneur en huile, gaz et kérogène...

2 - L'origine des concrétions

Deux travaux parus la même année aux Etats-Unis et en Grande Bretagne envisagent le problème du concrétionnement dans les shales. Tous deux admettent que les concrétions peuvent se former bien après la sédimentation elle-même, c'est-à-dire pendant la période de diagenèse. Mais tout deux ignorent le mot et utilisent un autre vocabulaire. TARR (1921) reprend les termes des métallogénistes, syngenèse et épigenèse ; autrement dit, il propose seulement l'alternative pendant-après. RICHARDSON (1921) envisage trois moments de l'histoire du dépôt : contemporaneous, penecontemporaneous, subsequent, sans souffler mot de diagenèse.

Ainsi donc, à une époque où la notion de diagenèse a déjà trente ans d'existence, en Allemagne, où les travaux d'ANDREE lui ont donné l'importance que l'on sait, où le traité de HAUG (1907) l'a fait connaître au public français, cette notion est ignorée, apparemment, des chercheurs britanniques et américains. C'est le traité de TWENHOFEL qui la fera connaître.

III - LA GENERALISATION DU TERME "DIAGENESIS"

La première édition de "Treatise on Sedimentation" (TWENHOFEL, 1926) consacre un chapitre aux phénomènes de diagenèse. L'auteur se réfère à WALTHER et donne de la diagenèse la même définition que celui-ci :

"Entre le dépôt des sédiments et leur lithification peuvent se produire toutes sortes de changements. Ces changements sont compris dans le terme de diagenèse utilisé ici pour désigner l'ensemble des modifications que subissent les sédiments entre leur dépôt et leur lithification dans les conditions normales des milieux sédimentaires, ainsi que toutes les transformations après consolidation dans les conditions normales de température et de pression, à l'exclusion des changements catamorphiques ayant pour effet la désagrégation des roches".

Il donne ensuite une revue brève des phénomènes d'échanges chimiques entre les eaux interstitielles et le sédiment, des actions biologiques et organo-chimiques, du jeu des sulfates et des sulfures dans le transport de l'oxygène, enfin des néoformations diagénétiques.

Les limites proposées par TWENHOFEL appellent des remarques fort importantes.

1 - Limite supérieure

TWENHOFEL établit implicitement une limite tranchée entre la sédimentation ou dépôt ("deposition") et la diagenèse. Une telle coupure, admise aujourd'hui par tous les sédimentologistes et justifiée par les données récentes sur la physico-chimie des sédiments actuels sera négligée par une importante école de géologues et minéralogistes des argiles, ainsi que je le dirai plus tard.

2 - Limite inférieure

TWENHOFEL apporte quelques pages plus loin une restriction à la définition large citée plus haut. Il écrit :

"La lithification pourrait être considérée comme une partie de la diagenèse, bien que peu de choses en soient connues".

Cette lithification ou consolidation se fait par compaction, cimentation, et recristallisation, et le désir exprimé par TWENHOFEL de considérer ces phénomènes complexes comme en dehors de la diagenèse proprement dite va marquer définitivement la conception américaine de la zone de diagenèse. En effet, pour la grande majorité des géologues américains, la diagenèse ne concerne que les stades les plus précoces de l'évolution d'une boue sédimentaire, et cela en dépit des traités de KRUMBEIN et SLOSS (1963), WILLIAMS, TURNER et GILBERT (1954), PETTIJOHN (1949, 1957) qui adoptent la conception européenne du terme et étendent la diagenèse jusqu'aux frontières du métamorphisme.

TWENHOFEL fera amende honorable de cette restriction, quelques années plus tard, dans la première édition de ses "Principles of Sedimentation" (1939). Il écrira :

"La diagenèse comprend toutes les modifications que subit un sédiment entre son dépôt et sa transformation en roche dans des conditions de température et de pression qui sont les conditions normales de la surface de l'écorce ; elle comprend, en outre, les changements qui prennent place après la lithification dans les mêmes conditions de température et de pression et qui n'ont pas un caractère catamorphique conduisant à une délithification."

IV - LES CONCEPTIONS RECENTES (1942-1966)

1 - KRUMBEIN (1942, 1947)

On peut considérer que la période moderne s'ouvre avec l'article fondamental de KRUMBEIN (1942). Celui-ci reprend la définition classique, celle que TWENHOFEL a donnée en 1939. Il précise clairement que les phénomènes de métamorphisme et d'altération superficielle sont à exclure de la zone de diagenèse. Celle-ci se termine asymptotiquement en profondeur ("indefinitely at a decreasing rate") ; elle commence au contraire de façon très précise à l'interface qui sépare le sédiment frais du milieu de sédimentation ("the interface between sediment and environment"). Il propose de distinguer les facteurs entrant en jeu dans la diagenèse (compaction, cimentation, recristallisation, remplacement, dissolution sélective, authigenèse) des caractères pétrographiques sur lesquels s'exercent ces facteurs (granulométrie, surface, texture et orientation des particules, porosité, perméabilité, composition minéralogique, coloration, structures sédimentaires).

Quelques années plus tard, KRUMBEIN (1947) propose d'inclure les phénomènes d'altération superficielle dans la diagenèse au sens très large du terme. Cette option provoque une réplique de BLACKWELDER (1947) et une discussion. KRUMBEIN s'explique alors. Il a seulement voulu évoquer le cas d'une série dans laquelle des lacunes de sédimentation, voire des phases d'émersion, auraient développé des paléo-altérations, l'ensemble de la série étant ensuite repris par une diagenèse générale :

"Mon intention était avant tout d'indiquer que, dans l'histoire post-sédimentaire des sédiments, pouvait se placer un épisode d'altération superficielle avec le développement d'un profil de sol ; si le profil était enfoui par la suite, il subirait alors des changements qui, en un sens, seraient diagénétiques."

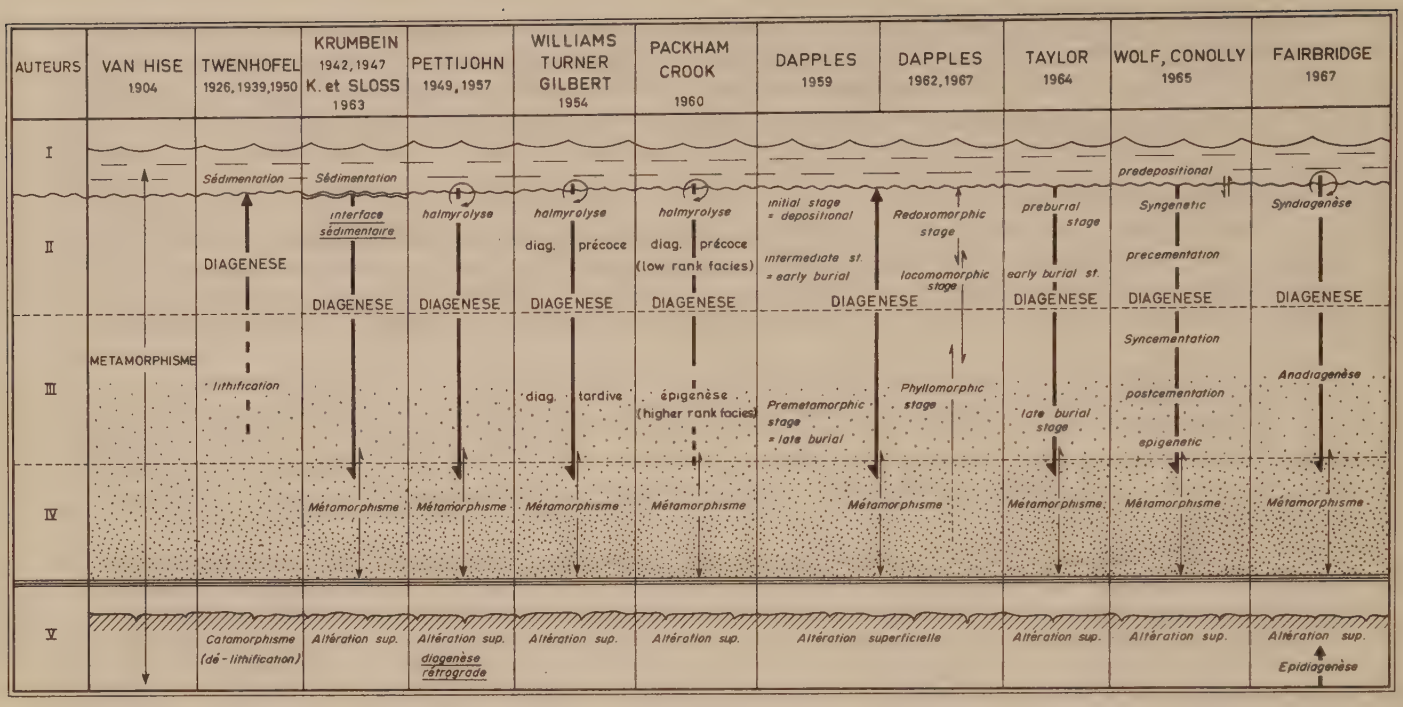


Fig. 4 - La diagenèse dans la nomenclature anglaise.

I - Les particules détritiques sont encore en mouvement dans l'eau.
II - Les particules sont immobilisées dans un sédiment riche en eau, mais isolées du milieu de sédimentation.

III - Le sédiment est devenu une roche plus ou moins compacte.

IV - La série sédimentaire se trouve placée dans des conditions de métamorphisme général.

V - La série sédimentaire se trouve ramenée dans des conditions de décompression et de lessivage qui sont celles de l'affleurement.

En réalité, les parties II et III représentent des épaisseurs de sédiment très inégales, des dizaines de mètres pour la partie II, des centaines voire des milliers de mètres pour la partie III.

L'accord est donc total dans les années 1945-1950 entre les allemands, représentés par CORRENS et les américains, représentés par TWENHOFEL et KRUMBEIN. La diagenèse est cette grande phase de l'histoire d'un sédiment, qui commence avec son immobilisation au fond d'un bassin et se poursuit aussi longtemps que la série n'a pas été touchée par un métamorphisme et n'a pas été placée dans des conditions de lessivage et d'oxydation qui sont celles de l'altération superficielle.

2 - Les traités classiques depuis 1950

TWENHOFEL (1950) dans sa deuxième édition des "Principles" reprend sa définition de 1939, citée plus haut. Il concède que la diagenèse comprend "...en outre les changements qui prennent place après la lithification..." mais il laisse entendre que les phénomènes proprement diagénétiques sont liés au sédiment frais, gorgé d'eau, riche en organismes et en matière organique. Cette restriction n'aura aucun écho dans les traités de pétrographie sédimentaire qui suivront, mais elle laissera sa marque sur de nombreux géologues américains, qui, bien souvent, entendent "early diagenesis" en écrivant "diagenesis".

RANKAMA et SAHAMA (1950) écrivent en anglais, mais ils sont héritiers de la culture européenne. Ils donnent sa place classique à la zone de diagenèse.

"Les changements diagénétiques commencent aussitôt que le sédiment s'est déposé", et plus loin"... tous les stades intermédiaires entre la diagenèse et le métamorphisme sont présents..."

WILLIAMS, TURNER et GILBERT (1954) traitent plus précisément du problème des limites. A la limite supérieure, ils admettent la possibilité d'une action du milieu marin sur le nouveau sédiment et reprennent le terme d'"halmyrolyse" de HUMMEL (1922). Ils proposent de distinguer early diagenesis de late diagenesis suivant que les réactions ont lieu aussitôt après le dépôt ou longtemps après. Il faut imaginer, bien sûr, qu'une série continue de transformations conduit de l'un à l'autre de ces pôles. Plus bas, on passe graduellement au métamorphisme : "Le métamorphisme de basse température, bien entendu, ne peut pas être séparé de la diagenèse sédimentaire".

PETITJOHN (1957) dans la deuxième édition de son traité, si largement répandu, consacre un chapitre entier à la lithification et la diagenèse. Il fait le point des connaissances acquises dans les diverses manifestations de la diagenèse : cimentation, dissolution, authigenèse, ségrégation, métasomatose, compaction. Mais PETTIJOHN reste assez évasif dans la définition de la zone de diagenèse. Il admet la possibilité d'une action directe du milieu marin sur le sédiment déjà en place (halmyrolyse) ; il admet aussi la continuité des phénomènes de diagenèse poussée et de métamorphisme léger ; il admet enfin une "diagenèse rétrograde", terme de passage à l'altération superficielle. On peut regretter qu'une autorité comme celle de PETTIJOHN n'ait pas proposé de définition claire ; peut-être les confusions de langage qu'on évoquera plus loin (p. 40) auraient-elles été évitées.

WELLER (1960) passe en revue les principales manifestations de la diagenèse dans les principaux faciès : grès, shales, calcaires etc... Celle-ci est définie très sommairement : "Les processus...qui transforment des sédiments en roches consolidées sont généralement désignés par le terme de diagenèse". On lit quelques lignes plus haut une phrase surprenante dans un traité moderne : "Le métamorphisme de la plupart des sédiments commence aussitôt après leur dépôt..." C'est le sens très large du mot "métamorphisme", tel que l'entendait VAN HISE en 1904. Un tel emploi est inacceptable aujourd'hui, où le vocabulaire scientifique doit se préciser sans cesse pour exprimer des phénomènes de mieux en mieux définis.

Le traité de KRUMBEIN et SLOSS dans sa deuxième édition (1963) est celui des ouvrages récents qui apporte la meilleure connaissance de ce que sont les "postdepositional changes in sediments". "Postdepositional" et "diagenetic" sont pris comme synonymes. Les définitions données sont claires et précises :

"Au moment de son dépôt, un sédiment peut être constitué de particules meubles détritiques, cristaux, fragments d'organismes, boues colloïdales ou mélanges de ces éléments. Lorsqu'une pellicule de sédiment s'est formée, elle devient une interface entre les matériaux déposés précédemment et le milieu de sédimentation.

Le milieu diagénétique est le milieu d'évolution post-sédimentaire. Il s'étend vers le bas à une distance non définie de l'interface sédimentaire. La nature du milieu diagénétique et la vitesse des changements post-sédimentaires dépendent du milieu de dépôt et du type de sédiment qui s'est déposé.

L'interface sédimentaire représente une limite importante séparant deux domaines physico-chimiques différents."

Les travaux récents des sédimentologistes océanographes, dont nous analyserons plus loin les résultats, montrent l'importance considérable de la "depositional interface", l'interface sédiment-milieu qui isole deux domaines géochimiquement indépendants. Les chercheurs soviétiques arrivent à la même conclusion, nous l'avons dit. On a donc l'espoir de voir se clore le débat autour du début de la zone de diagenèse : celle-ci commence au-dessous de l'interface sédiment-milieu. Le milieu marque certes son empreinte sur les débuts de cette diagenèse mais il le fait une fois pour toutes, par l'héritage géochimique qu'il laisse au nouveau sédiment.

Quelques conclusions s'imposent après la lecture des récents traités de langue anglaise.

1. En Grande Bretagne ce n'est que tout récemment que la notion de diagenèse est passée dans le langage courant. La huitième édition de la "Petrology" de HARKER (1954) n'en souffle pas mot. Le gros ouvrage de MILNER (1962), dans sa quatrième édition, ignore encore le mot de "diagenesis", bien qu'il décrive des phénomènes de "cementation" et d'"authigenesis" (vol. II, p. 276). La notion de diagenèse est cependant définie la même année par READ et WATSON (1962) dans leur "Introduction to geology". Enfin la quatrième édition du HATCH et RASTALL (1965) par GREENSMITH ouvre un chapitre intitulé "Diagenesis and related processes" dans lequel sont abordées toutes les transformations subies par un sédiment depuis l'immobilisation des particules détritiques jusqu'aux frontières du métamorphisme et de l'altération superficielle.

2. KRUMBEIN a abordé les phénomènes de diagenèse d'une façon particulièrement pénétrante et son traité avec SLOSS, en 1963, apparaît comme la meilleure mise au point à cette date.

3. TWENHOFEL, de 1926 à 1950, a toujours tenté de rétrécir la zone de diagenèse et de la limiter au domaine des transformations immédiatement post-sédimentaires.

3 - Les synthèses

En marge des traités classiques que nous venons de passer en revue, ont paru des articles de synthèse sur la notion de diagenèse. On peut en noter cinq particulièrement importants dans la littérature de langue anglaise. Nous les présenterons par ordre chronologique.

a. SUJKOWSKI (1958). L'article posthume de SUJKOWSKI est une réflexion assez poussée sur les phénomènes de diagenèse en général, à travers différents faciès pétrographiques. La documentation bibliographique y est malheureusement très légère de sorte que ce long texte ne peut prétendre représenter le point des connaissances.

Le domaine de la diagenèse y est défini largement et simplement :

"Le terme de diagenèse est utilisé dans cet article pour désigner tous les phénomènes qui transforment un sédiment frais en une roche solide, compacte, dans des conditions de pression et de température pas très éloignées de celles qui règnent à la surface de la terre.

Les limites de temps sont, d'un côté, le moment du dépôt d'une nouvelle couche sédimentaire et, de l'autre, le début du métamorphisme. Naturellement, la seconde limite ne peut pas être déterminée avec précision sous le rapport de la température ou de la pression, mais seulement à quelques degrés près par des changements caractéristiques dans la composition minéralogique."

Et plus loin : "D'un autre côté, il n'y a pas de frontière précise entre diagenèse et altération superficielle."

b. PACKHAM et CROOK (1960). Les thèses récentes de PACKHAM et de CROOK sur d'épaisses séries paléozoïques australiennes apportent quantité de faits nouveaux sur les recristallisations diagénétiques. Elles représentent surtout une approche tout à fait nouvelle de la pétrographie sédimentaire. Les idées des auteurs et les conclusions auxquelles ils sont arrivés indépendamment ont été mises en commun dans une tentative pour définir des "faciès diagénétiques" tout comme les "faciès métamorphiques" d'ESKOLA. L'ensemble de la zone de diagenèse est défini très largement, selon l'usage.

"La diagenèse peut être subdivisée en halmyrolyse, diagenèse précoce et épigenèse, désignant respectivement les changements avant et pendant le dépôt, immédiatement après l'enfouissement et dans les conditions de la profondeur."

Deux faciès diagénétiques principaux sont proposés, le "low-rank facies" et le "higher-rank facies" correspondant aux stades précoces ou tardifs des transformations.

"La définition des faciès diagénétiques ne peut pas avoir une formulation aussi précise que celle des faciès métamorphiques, puisque la notion d'équilibre ne peut généralement pas s'appliquer, étant donné que des minéraux métastables sont typiquement présents dans certains assemblages. Leur absence de réaction est importante en soi pour caractériser l'assemblage en question. Les faciès diagénétiques ainsi définis doivent être différents des faciès métamorphiques aussi longtemps que persistent ces phases métastables."

Un certain nombre de "parfacies" (terme utilisé par les auteurs) peuvent ensuite être définis à l'intérieur de chaque zone.

Les subdivisions du "low-rank facies" sont en relation avec les variations d'Eh, de pH et de pression. Elles tiennent compte des données de KRUMBEIN et GARRELS (1952).

Le paramètre déterminant du "higher-rank facies" est la température. Les observations de PACKHAM et CROOK concernent surtout cette zone inférieure de la diagenèse. Elles présentent l'intérêt supplémentaire d'être mises en parallèle avec les résultats de COOMBS (1954) sur le "zeolitic facies" défini en Nouvelle-Zélande dans la zone tout à fait supérieure du métamorphisme.

Avec PACKHAM et CROOK apparaissent non seulement des données nouvelles mais également une nouvelle méthode d'analyse qui s'inspire des travaux réalisés dans les faciès métamorphiques et tient compte des connaissances acquises dans le domaine des équilibres minéralogiques en relation avec les lois de la thermodynamique.

c. GLOVER (1962). C'est encore en Australie que paraît une mise au point sur les recristallisations diagenétiques telles qu'on peut les observer au microscope. GLOVER prend les précautions habituelles pour présenter le mot de diagenèse. Il s'accorde sur la définition très large de PETTIJOHN et il écrit :

"La diagenèse est un phénomène de faible température qui passe au métamorphisme avec l'accroissement de celle-ci. La diagenèse sera subdivisée ici en "early" et "late diagenesis", sans qu'on cherche à définir précisément leurs limites."

Ce long article de GLOVER, très bien documenté, passe en revue un certain nombre de recristallisations diagénétiques dans les grès et arkoses, les calcaires et les dolomies. Mais il s'intéresse tout particulièrement aux "textures" diagénétiques telles qu'on peut les reconstituer par l'usage de la platine universelle selon la méthode préconisée par GILBERT et TURNER (1949).

d. TAYLOR (1964) présente une revue très détaillée des phénomènes diagénétiques et en donne une bibliographie assez importante. Il reprend à son compte la définition de READ et WATSON (1962) :

A l'autre frontière : "Les phénomènes de diagenèse et d'altération superficielle, bien que séparés par de nombreux auteurs, doivent passer graduellement des uns aux autres."

"La diagenèse comprend tous les changements qui s'effectuent dans un sédiment près de la surface de l'écorce à température et pression faibles et sans l'intervention directe de mouvements crustaux. Elle prolonge l'histoire du sédiment immédiatement après son dépôt et passe au métamorphisme lorsque la température et la pression s'accroissent."... "Mis à part le fait que, sous sa forme présente, elle n'exclut par nommément tout le domaine des altérations sub-aériennes, cette définition est difficile à améliorer."

Quant aux subdivisions, TAYLOR propose un "preburial stage" comprenant les transformations dans le sédiment fraîchement déposé, avec ou sans intervention ultérieure du milieu (halmyrolyse) ; puis viennent un "early burial stage" et un "late burial stage" correspondant aux transformations avant et après lithification. TAYLOR accorde une attention particulière au "milieu diagénétique" ("diagenetic environment") réalisé à chacune de ces étapes. Il tente de reconstituer ce milieu pour les principaux faciès pétrographiques (argiles, grès, carbonates, évaporites, faciès ferrugineux et faciès sulfureux).

e. FAIRBRIDGE (1967). La revue présentée au VII° Congrès International de Sédimentologie et publiée dans le recueil de LARSEN et CHILINGAR (1967), présente une réflexion très poussée sur les problèmes de la diagenèse. Le titre de l'article est discutable, car il énonce les termes de "diagenèse" et d'"authigenèse" comme s'ils étaient opposés ou complémentaires. Or le texte ne montre rien de ce genre. C'est une analyse bien documentée des principales acquisitions récentes, en particulier celles qui concernent les premiers stades de la diagenèse. Une nomenclature est proposée (fig. 4). Les zones définies sont parfaitement justifiées ; en revanche, la création de mots nouveaux risque d'accroître encore la confusion du langage. Le terme d'épidiagenèse, par exemple, pourra être compris par les géologues russes comme une transition entre la diagenèse et l'épigenèse profonde, alors qu'il s'agit du contraire.

Il me paraît nécessaire de rappeler ici les définitions de FAIRBRIDGE (1967, p. 78). Par delà le caractère discutable des néologismes elles offrent un grand intérêt.

1. Syndiagenèse : elle représente les premières conditions sédimentaires réalisées au moment même où une particule sédimentaire s'immobilise sur le fond du bassin. Les transformations peuvent même commencer plus tôt, par l'halmyrolyse, qui implique des réactions entre les particules minérales et l'eau de mer pendant leur transport vers les zones plus basses, et se poursuivent après l'enfouissement.

2. Anadiagenèse : c'est le stade d'enfouissement profond, durant lequel les bassins sédimentaires sont progressivement affaissés et chargés. Ce stade est marqué, en général, par un mouvement des fluides vers le haut ou vers les côtés (parties marginales du bassin).

3. Epidiagenèse : c'est le stade final de surrection où les solutions connées sont modifiées par les circulations profondes (eaux météoriques ou vadoses) et où des conditions oxydantes réapparaissent. Il y a toutefois une limite supérieure à ce stade, représentée par le niveau où commence l'altération superficielle et s'exerce une désagrégation active des roches. Dans l'épidiagenèse, le mouvement des fluides se fait vers le bas et vers les parties centrales des bassins.

4 - La limite supérieure : "early diagenesis"

Les travaux des sédimentologistes et des océanographes sur la sedimentation actuelle permettent de saisir les tout premiers stades de l'évolution d'un sédiment. Ce domaine de recherche

s'est développé assez rapidement au cours des vingt dernières années. Les observations qui intéressent la diagenèse précoce se trouvent rassemblées dans quelques articles fondamentaux, en particulier dans ceux de ZO BELL (1946), EMERY et RITTENBERG (1952), DEBYSER (1952, 1961) SHEPARD et MOORE (1955), KAPLAN et RITTENBERG (1963), DEGENS (1964, 1965), MACKENZIE et GARRELS (1966).

Les faits acquis sur l'évolution d'une boue sédimentaire au cours des premiers mètres de son enfouissement constituent déjà une masse imposante. Ils concernent trois types de données :

- Les données physico-chimiques (pH, Eh, teneur en eau, plasticité, couleur etc...)
- La nature et l'évolution de la matière organique,
- L'activité biologique, et en particulier bactérienne.

Il s'agit donc de travaux physiques, chimiques et biochimiques plus que géologiques et pétrographiques. La place exacte de ces phénomènes dans le grand cycle géochimique a donc assez peu préoccupé les sédimentologistes océanographes. Certains se sont pourtant clairement exprimés sur la limite qui nous intéresse, celle du sommet de la zone de diagenèse. Il faut citer SHEPARD et MOORE (1955) :

"En fait, le moment exact où les transformations subies par une particule sédimentaire doivent être considérées comme diagénétiques est indéterminé, d'autant qu'une particule donnée peut être déposée, remise en suspension et redéposée plusieurs fois avant d'avoir pris la place qu'elle occupe actuellement dans la colonne géologique. Dans la discussion qui suit, la diagenèse ne sera pas considérée comme commencée avant que le sédiment étudié n'ait gagné sa place définitive dans le cycle d'érosion, transport et sédimentation qu'il parcourt. Les changements ou transformations des particules qui interviennent avant cette immobilisation finale ne seront pas considérés comme diagenèse, mais comme influence du milieu sur ces particules."

Les travaux des océanographes nous incitent donc à définir le point de départ des actions diagénétiques comme celui ou les particules sédimentaires sont immobilisées. C'est bien ce qu'entendent KRUMBEIN et SLOSS (1963) lorsqu'ils insistent sur le rôle de la "depositional interface" et qu'ils donnent comme synonymes "diagenetic" et "postdepositional". Mais les phénomènes de remaniement par le milieu font partie de la diagenèse pour de nombreux auteurs (fig. 4). Il est bon de le savoir.

5 - La limite inférieure : "late diagenesis"

FLAWN (1953) étudie les recristallisations à travers la zone inférieure de diagenèse et le métamorphisme le long de la série : claystone - shale - argillite - slate - phyllite - schist - gneiss. Il ne propose pas de limite et note : "Il n'est pas toujours facile de délimiter les changements diagénétiques et métamorphiques..."

Les ouvrages classiques de RAMBERG (1952) et de FYFE, TURNER et VERHOOGEN (1958) placent la zone de diagenèse à l'orée du domaine métamorphique. La définition par COOMBS en 1954 du faciès zéolitique, le plus "léger" des faciès métamorphiques permet de mieux cerner les limites de la simple diagenèse.

COOMBS (1961) a proposé des réflexions très poussées sur les tout premiers stades du métamorphisme et sur leur relation avec la diagenèse. Il constate le hiatus séparant les travaux des pétrographes des sédiments de ceux des pétrographes du métamorphisme à cause de la divergence des méthodes, des points de vue et des buts poursuivis. En fait, comme l'a bien dit PETTIJOHN (1957), la continuité est réelle d'un domaine à l'autre. Si une limite arbitraire doit être tracée entre diagenèse et métamorphisme, seul le facteur température, selon COOMBS, peut être raisonnablement utilisé.

Lorsque les minéraux du faciès zéolitique sont présents, et en particulier la laumontite, il est effectivement possible de parler de métamorphisme, puisque la laumontite ne peut pas prendre naissance en milieu sédimentaire. C'est le minéral critique communément admis comme premier indicateur de métamorphisme (WINKLER, 1968). L'un des inconvénients de cette définition est que la présence de zéolite dépend aussi du contexte géochimique. Bien des séries en sont dépourvues, qui ont pourtant été soumises à des températures qui sont celles du faciès zéolitique. On proposera dans ce mémoire (p. 271) d'autres critères de caractérisation du métamorphisme débutant.

Les travaux les plus récents sur cette limite inférieure de la diagenèse d'enfouissement ont permis cependant d'identifier en bien des régions le faciès zéolitique défini en Nouvelle-Zélande. Citons pour l'Australie (KISCH, 1966, 1968; SMITH, 1969) et les Etats-Unis (DICKINSON, OJAKAN-

GAS et STEWART, 1969), pour l'Antarctique (HORNE, 1968), les Antilles (OTALORA, 1964) et l'Union Soviétique (KOSSOVSKAIA et SHUTOV, 1961). Il est probable que les années à venir apporteront beaucoup d'observations nouvelles grâce au perfectionnement des techniques minéralogiques fines, à leur utilisation de plus en plus large, ainsi qu'à l'intérêt grandissant pour cette zone de passage.

6 - Le recueil de LARSEN et CHILINGAR (1967)

J'ai déjà cité cet ouvrage qui est un recueil d'articles sur les grands chapitres de la diagenèse. Il constitue non pas une somme des connaissances, ce qui représenterait déjà un volume considérable, mais une mise au point des principales acquisitions sur la diagenèse des grès et de la silice (DAPPLES), des argiles (MÜLLER), des carbonates (CHILINGAR, BISSELL et WOLF), de la matière organique (DEGENS), des charbons (TEICHMÜLLER), des minerais (AMSTUTZ) et des solutions (DEGENS, von ENGELHARDT). Je renvoie le lecteur à ces différents chapitres, comprenant chacun une bibliographie importante. Je voudrais cependant évoquer la diagenèse des grès, des calcaires et des argiles dans la mesure où elles ont permis d'apporter des éléments nouveaux à la terminologie.

7 - La silice dans la diagenèse. (DAPPLES, 1967)

Le comportement de la silice au cours de la diagenèse a fait l'objet d'études assez poussées. Le Symposium "Silica in Sediments", tenu en 1958 à Los Angeles fait le point des recherches sur ce sujet aux Etats-Unis. En ce qui concerne la notion même de diagenèse il faut signaler là l'article de DAPPLES (1959). Il donne son sens large et général à la zone de diagenèse et propose trois grandes subdivisions (fig. 4) :

- "initial or depositional stage" : une évolution vers l'équilibre chimique entre les minéraux du sédiment, la fraction biogénique (tests) et les solutions interstitielles.

- "intermediate or early burial stage", avant compaction

- "late burial or premetamorphic stage" postérieur à la lithification.

DAPPLES apporte beaucoup de soin dans la définition de l'interface solide - liquide (the depositional interface). Cet élément est essentiel pour la connaissance des tout premiers stades de la diagenèse et en particulier des échanges sédiment - milieu (halmyrolyse).

Les mouvements de la silice et des silicates (dissolutions, recristallisations, remplacements etc...) sont ensuite analysés à travers les différents niveaux de la zone de diagenèse.

DAPPLES reprend en 1962 ses observations sur les grès et précise les associations minéralogiques caractérisant chacun des degrés de la diagenèse. C'est une application au domaine sédimentaire des méthodes pétrographiques du métamorphisme (paragenèses, réactions minéralogiques, diagrammes d'équilibre, etc...) Trois nouveaux termes sont proposés alors et définis à nouveau en 1967 (fig. 4) :

- Redoxomorphic stage : les réactions sont essentiellement des réactions d'oxydation et de réduction (réactions à double sens)

- Locomorphic stage : les minéraux se remplacent l'un l'autre sans entrer en réaction (réaction de remplacement)

- Phyllomorphic stage : développement des micas et chlorites aux dépens des argiles (réactions à sens unique)

Il faut signaler aussi, à propos du comportement de la silice, l'important travail de SIEVER (1962) qui donne à la zone de diagenèse son sens large et général :

"J'utiliserai le mot "diagenèse" dans son sens large, pour désigner tout phénomène postérieur au recouvrement d'une couche sédimentaire par la suivante, reconnaissant qu'il n'y a pas de limite réelle entre diagenèse et métamorphisme d'une part, entre diagenèse et altération superficielle d'autre part."

8 - La diagenèse des calcaires. (CHILINGAR, BISSELL et WOLF, 1967)

L'étude de la sédimentologie des carbonates a fourni ces dernières années de très nombreuses données sur les premiers stades de la diagenèse.

Ce sont d'abord les travaux de GINSBURG (1957) et FRIEDMAN (1964) sur les boues calcaires actuelles et leur lithification progressive et complexe par "early diagenesis". Il s'agit là, sans ambiguité, de phénomènes postérieurs à la sédimentation, bien que suivant celle-ci de très près.

Il faut noter ensuite le symposium "Dolomitization and limestone diagenesis" tenu en 1964 à Toronto (PRAY et MURRAY ed., 1965).

L'introduction par MURRAY et PRAY définit la zone de diagenèse de façon très générale.

Parmi les articles qui suivent, il en est deux qui apportent des éclaircissements ou des nouveautés dans la terminologie.

SCHMIDT (1965) présente une masse considérable d'observations pétrographiques et géochimiques faites sur des forages intéressant le Jurassique d'Allemagne du Nord. Il est amené à distinguer deux catégories de phénomènes diagénétiques : ceux qui affectent la composition minéralogique et chimique (remplacement, recristallisation, dissolution, cimentation, formation de nodules), et ceux qui altèrent la structure (fracturation, déformation plastique, remaniement par les organismes, tassement par dessication). Quant à la zonéographie de la diagenèse, SCHMIDT propose simplement la subdivision

- early diagenesis influencée par le milieu du dépôt
- late diagenesis indépendante de ce milieu

Les transformations syngénétiques sont celles qui interviennent tout au début de l'early diagenesis. A l'autre frontière, celle de l'altération superficielle (weathering), le terme de "surface diagenesis" est proposé.

Le long article de FOLK (1965) est particulièrement consacré aux phénomènes de recristallisation dans les calcaires tout au long de leur histoire diagénétique et à la complexité de la nomenclature qu'ils ont engendrés ("this terminological jungle"). On y trouvera une documentation très claire sur les multiples aspects de la recristallisation pour lesquels FOLK ressucite le vieux terme de "néomorphisme". Les innombrables manières d'être de la calcite dans la diagenèse y sont évoquées, cette diagenèse étant, encore une fois, le vaste domaine postsédimentaire.

"La calcite diagénétique (ou authigène) est toute calcite qui a cristallisé essentiellement in situ au sein du sédiment ou de la roche, à une époque comprise entre l'instant qui suit immédiatement le dépôt et celui de la mise à l'affleurement et à l'altération superficielle."

Il ne faudrait pas quitter la diagenèse des calcaires sans citer les très importantes contributions récentes à la diagenèse précoce des boues calcaires actuelles (BERNER, 1966) et à la diagenèse tardive de certains calcaires dévoniens d'Australie (WOLF et CONOLLY, 1965) (fig. 4).

Ces derniers résultats sont repris, avec d'autres, dans l'article de CHILINGAR, BISSELL et WOLF (1967).

9 - La diagenèse des minéraux argileux

La zone de diagenèse consitue un milieu où bon nombre des minéraux issus de la sédimentation se trouvent en déséquilibre. Les causes d'un tel déséquilibre sont à rechercher

- dans le sédiment lui-même où les hasards de l'héritage mettent en présence des minéraux et des solutions qui réagissent entre eux,

- dans le milieu diagénétique qui, par son confinement progressif, crée de nouvelles conditions de stabilité.

Les réseaux cristallins ont une sensibilité très variable aux conditions physico-chimiques qui les entourent. Ceux des argiles ont précisément une sensibilité très grande en raison

- de leur petite taille, c'est-à-dire de leur rapport élevé surface - volume,

- de leur structure feuilletée qui facilité les échanges d'ions entre le cristal et son entourage par l'intermédiaire des espaces interfoliaires.

Il est donc naturel que les transformations diagénétiques soient particulièrement importantes du côté des argiles. Elles sont même si importantes que leur étude, menée par des cristallographes, a conduit à des conclusions où la notion géologique de diagenèse a été détournée de son sens

originel. Il y a là une déviation assez grave du langage. "Diagenesis" pour bon nombre de spécialistes américains des argiles signifie tout autre chose que "diagenesis" ou "diagenèse" pour le commun des géologues. Nous allons voir de quelle manière s'est créée cette divergence.

Le premier travail sur la diagenèse des minéraux argileux est la thèse de DIETZ (1941). Il étudie la composition minéralogique de sédiments marins récents. L'illite domine largement et DIETZ suggère que les eaux marines et leur potassium provoquent l'illitisation des montmorillonites issues de l'altération continentale. Cette hypothèse est reprise quelques années plus tard par GRIM, DIETZ et BRADLEY (1949), qui apportent alors des nuances importantes. La réaction "illite dégradée + potassium marin $\longrightarrow$ illite" est prouvée. Le magnésium marin, lui aussi, mais à un degré moindre, pourrait être capté par les minéraux argileux. Quant à la montmorillonite, elle serait peu sensible aux conditions marines et ce n'est que plus tard, après l'enfouissement qu'elle commencerait sa transformation. Ces résultats, d'une qualité remarquable à une époque où la cristallographie des argiles était encore peu avancée, ont reçu de nombreuses confirmations. Ce sont eux cependant qui furent à l'origine de l'erreur de vocabulaire dont je veux parler. GRIM, DIETZ et BRADLEY (1949) nomment "diagenesis" ces transformations minéralogiques sous l'influence du milieu marin ("diagenesis under marine conditions"), tandis que les évolutions après enfouissement, comme la disparition de la montmorillonite, sont nommées par eux "metamorphism". Il y a donc là une erreur sur la place occupée par la diagenèse. Cette erreur ne surprend d'ailleurs pas chez des minéralogistes, à une époque où les géologues eux-mêmes, aux Etats-Unis du moins, s'intéressaient encore peu à la zone de diagenèse.

GRIM expose à nouveau les faits dans son traité de 1953 (p. 351). Les "diagenetic changes" sont ceux qui affectent les minéraux argileux dans le milieu marin, avant l'enfouissement : ce sont en particulier l'illitisation et la glauconitisation.

GRIM et BRADLEY, poursuivant leurs travaux, vont illustrer une "diagenèse" qui va s'éloigner de plus en plus de celle des géologues. Dans leur article fondamental "structural implications in diagenesis" (1955), cette diagenèse représente non plus du tout une partie du cycle géologique (fig. 1) mais les transformations cristallochimiques des minéraux sous l'influence du milieu de sédimentation. GRIM (1958) précise encore cette position quelques années plus tard :

> Une revue de la littérature montre qu'il n'y a pas d'accord général sur une définition précise de la diagenèse. En général, elle se rapporte aux changements qui s'effectuent quand un sédiment passe d'un milieu dans un second milieu où il s'accumule".

BRADLEY (1961) va encore plus loin en nommant "diagenèse" toute transformation positive ou négative (agradation ou dégradation) affectant un réseau d'argile, dans quelque milieu que ce soit.

La réalité de ces transformations minéralogiques n'est pas à mettre en doute, et l'intérêt des travaux réalisés par GRIM, BRADLEY et leurs élèves est considérable ; mais l'utilisation faite par eux du vieux mot de "diagenèse" est par trop singulière. Elle rend difficile le dialogue entre spécialistes américains et européens de la sédimentologie des argiles et jette le trouble dans l'esprit des jeunes chercheurs à qui fut enseigné que la diagenèse était l'"ensemble des transformations subies par un sédiment après son dépôt, à l'exclusion des phénomènes de métamorphisme et d'altération superficielle".

Deux exemples, frappant parmi d'autres, de ce trouble apporté dans le langage sont offerts par les thèses de BURST et POWERS qui marquent un progrès décisif dans la connaissance de l'évolution diagénétique des argiles.

BURST (1959) décrit les transformations des argiles par enfouissement à travers une épaisse série éocène. Ce sont là des transformations typiquement diagénétiques ; BURST, cependant, croit devoir les décrire comme "postdiagenetic", terme incompréhensible pour qui ne connaît pas la "diagenèse" de GRIM et BRADLEY.

POWERS (1959) étudie les argiles des sédiments récents et note des transformations après enfouissement en relation avec les teneurs relatives en magnésium et potassium. Ce sont donc des phénomènes diagénétiques ; POWERS éprouve la nécessité de préciser "petrodiagenetic", par opposition à "hydrodiagenetic" qui se rapporte au milieu marin, comme si diagenèse et milieu marin devaient être liés dans l'esprit du lecteur.

Des articles de synthèse (WEAVER, 1959; KELLER, 1963, 1964) permettent de mesurer l'importance prise par ce vocabulaire particulier.

WEAVER est géologue. Il connait les pièges du mot "diagenèse". Pour désigner les zones où se produisent les phénomènes, il utilise la vieille notion des métallogénistes, celle qu'ont reprise certains auteurs russes (fig. 3) : syngenèse et épigenèse. Que devient alors la notion de diagenèse ? Avec une réticence sous-entendue, WEAVER (1959) confirme la signification singulière définie par GRIM et BRADLEY :

"Une certaine incompréhension s'est manifestée chez les minéralogistes et les pétrographes des argiles, causée par la disparité de conception de certains termes utilisés pour décrire les phénomènes les plus importants qui affectent les minéraux argileux. C'est pourquoi quelques termes utilisés dans cet article seront définis. WEAVER (1958), dans le but de mieux comprendre la genèse des minéraux argileux, a suggéré qu'il était essentiel de distinguer les modifications qui affectent le réseau lui-même de celles qui affectent les espaces interfoliaires. Ainsi, la diagenèse chimique serait limitée aux modifications du réseau, tandis que les altérations affectant les espaces interfoliaires ne seraient pas considérées comme des phénomènes de diagenèse, mais d'absorption ou d'échange. Par exemple, le processus par lequel un mica, dépouillé de son potassium, récupère son potassium, ne sera pas considéré comme diagenèse mais comme adsorption de potassium. Cette terminologie a l'avantage d'indiquer en quelque sorte l'intensité de la transformation qui a eu lieu."

La diagenèse n'est plus une zone du cycle, mais un mécanisme. Le malentendu entre minéralogistes des argiles et géologues, dénoncé pourtant par WEAVER, va donc s'aggraver grâce à lui, quoi qu'il en dise.

Avec KELLER (1963, 1964), c'est encore l'opinion d'un géologue que nous entendons, mais d'un géologue intimement mêlé aux problèmes minéralogiques soulevés par la sédimentologie des argiles. Placé entre deux vocabulaires, celui des minéralogistes (GRIM et BRADLEY, 1955) et celui des pétrographes modernes (PACKHAM et CROOK, 1960, par exemple) il ne lui est pas possible de faire un choix. Il tourne le problème en élargissant à l'extrême le sens des termes, en simplifiant le schéma du cycle sédimentaire. Les minéraux argileux, tout comme les autres mais d'une façon particulièrement vive, sont soumis à des phénomènes de "dégradation" et d'"agradation" qui furent définis par GRIFFITHS (1952). C'est le catamorphisme et l'anamorphisme, s'exerçant surtout, l'un dans la zone d'altération (weathering), l'autre dans les deux zones de la diagenèse et du métamorphisme. Les réactions anamorphiques, telles que la reconstitution de l'illite en milieu marin, appartiennent donc implicitement à la zone de diagenèse dont les limites sont laissées volontairement dans le vague : "Il n'est pas question, dans cet article, d'accorder les différentes définitions de la diagenèse."

En fin de compte, la diagenèse n'est plus seulement la zone que les sédimentologistes s'efforcent de circonscrire de plus en plus finement. Elle est devenue en outre un mécanisme, défini par des minéralogistes, selon lequel des réseaux cristallins peuvent se modifier, indépendamment de la place dans le temps et dans l'espace où ce mécanisme s'exerce. C'est ainsi que KELLER (1964), énumérant les divers modes de formation des minéraux argileux, cite néoformation, remplacement, altérations diverses, diagenèse, hydrothermalisme, synthèses en laboratoire, etc...

CONCLUSION BREVE

- La diagenèse des argiles a été étudiée aux Etats-Unis depuis 25 ans avec un succès certain.

- Ces études ont montré que les argiles étaient très sensibles au milieu et que le milieu marin était responsable de modifications particulièrement importantes.

- Les minéralogistes menant ces recherches ont avancé le mot de "diagenèse" pour décrire ces modifications, sans savoir que ce mot désignait dans la littérature géologique les modifications postsédimentaires.

- Des chercheurs engagés dans cette voie aggravèrent le contresens en nommant "diagenèse" certains types de transformations cristallochimiques des réseaux argileux.

- Les géologues des argiles, héritiers du vocabulaire géologique classique et confrontés avec le langage particulier créé par certains minéralogistes, se trouvent devant un dilemme délicat.

- Le nombre et l'importance des travaux qui témoignent de ce malaise terminologique sont considérables. On peut les noter, par centaines, dans les articles récents de KELLER (1963, 1964).

- Il est à souhaiter que les sédimentologistes américains laissent à la diagenèse sa place traditionnelle entre la sédimentation et le métamorphisme, et utilisent un vocabulaire non spécialisé pour décrire les modifications des réseaux cristallins (transformations, dégradations, agradations, néoformations, recristallisations, etc...).

- Il devient indispensable de définir la diagenèse comme une zone du cycle géologique, zone dont les frontières doivent être sans cesse discutées et précisées, et où toutes sortes de mécanismes physico-chimiques peuvent s'exercer.

LA NOTION DE DIAGENÈSE : RÉSUMÉ ET CONCLUSION

Au terme de cette longue analyse les conclusions seront brèves, car il s'agit bien d'un travail d'analyse de la notion de diagenèse, sans qu'aucune synthèse soit proposée pour l'instant. J'ai exposé au début de cet article les raisons qui ont inspiré une telle recherche. Ce sont, pour les résumer :

- l'éloignement des premières définitions, déjà centenaires ;

- la langue allemande, peu familière au commun des chercheurs, dans laquelle furent exposés les premiers faits ;

- la multiplication des travaux récents qui fait de toute recherche bibliographique un travail long et difficile ;

- une certaine idée que les travaux anciens sont démodés, alors que ce sont eux qui ont créé le vocabulaire dont nous nous servons, et que ces mots, en retour, influencent nos conceptions ;

- la richesse qualitative et quantitative des travaux américains où les références bibliographiques sont bien souvent, par voie de conséquence, exclusivement américaines ;

- enfin une dernière raison, la plus déterminante peut-être, que signalait WEGMANN (1962) : le grand nombre de Centres de Recherches de création récente, où la documentation ancienne fait généralement défaut.

J'ai voulu porter remède à cette carence en présentant ici une revue, aussi complète que possible, de tous les travaux qui ont apporté une touche nouvelle à la notion de diagenèse depuis sa création, il y a cent ans.

Le plan qui a été suivi ne répond pas au souci d'approuver ou de désapprouver certaines conceptions nationales. Il s'est avéré, simplement, que chaque groupe linguistique avait vu la notion de diagenèse évoluer d'une façon particulière, pour la raison bien naturelle que chacun lit, de préférence, les travaux écrits dans sa propre langue. Cependant, malgré les tendances qui se sont ainsi marquées, certains traits communs se dégagent, tant dans les interprétations que dans les recherches elles-mêmes.

1 - L'ACCORD TEND A SE REALISER SUR LA NOTION DE DIAGENESE

La notion a été introduite par WALTHER dans la littérature allemande, par HAUG en France, et par TWENHOFEL dans la langue anglaise. Il s'est avéré que la diagenèse représentait une partie du grand cycle et non pas un mécanisme particulier, et que dans cette partie du cycle, dans cette "zone", toutes sortes de "mécanismes" pouvaient prendre place. Ce sont les définitions simples et très larges données par CORRENS qui semblent avoir eu le plus d'audience : la diagenèse est définie comme la "zone" représentée fig. 1, ou comme l'"ensemble des mécanismes" entrant en jeu dans cette zone. Les trois frontières de ce domaine (fig. 1) sont généralement considérées comme des points sensibles, où les définitions se heurtent aux insolubles problèmes de limites.

Il faut pourtant signaler deux exceptions majeures à cette entente générale.

a. De nombreux minéralogistes des argiles, aux Etats-Unis, ont adopté le mot de diagenèse dans un sens tout à fait détourné, se rapportant aux modifications des réseaux cristallins sous l'influence du milieu dans lequel ils se trouvent.

b. Les géologues soviétiques ont rétréci la zone de diagenèse au domaine où les sédiments sont encore non consolidés. Il faut donc bien savoir que pour les auteurs russes "diagenèse" veut dire "diagenèse précoce" ("early diagenesis") si on veut éviter des erreurs d'interprétation (fig. 2).

2 - LES RECHERCHES EN COURS PORTENT ESSENTIELLEMENT SUR LES ZONES FRONTIERES

Les travaux les plus fructueux se font sur les trois frontières qu'on a schématisées figure 1.

a. Frontière "sédimentation - diagenèse". Elle se situe sur le fond des mers et les travaux sur les sédiments récents la recoupent. Tous les pays sont engagés dans les recherches d'océanographie géologique, et particulièrement les Etats-Unis. La masse imposante des résultats nouveaux apportés chaque année nous éclairera bientôt les contours exacts de cette frontière, la réalité des échanges milieu-sédiment, et le rôle des eaux interstitielles dans les premières transformations.

b. Frontière "diagenèse - métamorphisme". Celle-ci est inaccessible dans la nature actuelle. Elle sera donc plus difficile à préciser. Les nombreux travaux que nous avons cités se rapportent à trois groupes principaux :

- les travaux soviétiques par microscopie optique qui apportent des résultats très importants grâce au nombre considérable des observations et au domaine de choix que représente la plate-forme russe ;

- les données des forages profonds exécutés pour la recherche pétrolière, qui fournissent un matériel indispensable et capital pour l'étude de la diagenèse tardive ;

- les paragenèses du faciès zéolitique qui constitue en nouveau jalon sur le chemin des profondeurs.

c. Frontière "diagenèse - altération superficielle". Celle-ci est encore très peu connue. Elle se situe bien au-dessous de la zone d'altération superficielle proprement dite, de la zone de pédogenèse. C'est celle qui reçoit les noms d'hypergenèse, de diaphtorèse, d'épidiagenèse, de rétro-diagenèse ou diagenèse régressive dont on commence seulement à mesurer les effets (LELONG et MILLOT, 1966).

DEUXIÈME PARTIE

MÉTHODES EXPÉRIMENTALES

La plupart des observations présentées dans ce mémoire ont été faites par les méthodes classiques de la minéralogie et de la géochimie appliquées aux sédiments. Il n'est pas question de les décrire en détail, mais d'indiquer simplement la référence des procédés et des appareils utilisés.

Toutefois certaines mesures ont été réalisées selon une technique peu courante. Il est bon que le lecteur connaisse alors avec exactitude les conditions d'expérience et de mesure pour être à même de juger de la validité des résultats, et pour pouvoir, le cas échéant, utiliser à son tour ces techniques.

I - LA DENSITE ET LA POROSITE DES ROCHES

On n'a pas cherché à les déterminer de façon très précise en valeur absolue, mais plutôt à mettre en oeuvre une méthode simple, rapide et parfaitement reproductible. Ainsi pouvait-on espérer déceler les variations relatives le long des séries traversées par forage.

Les densités ont été mesurées par la méthode de la double pesée.

On a utilisé l'eau de ville : une série de mesures faites sur eau de ville d'une part et eau distillée d'autre part nous a montré que l'erreur relative introduite dans le premier cas ne dépassait pas 0,4 %.

Chaque échantillon a été soumis à 3 opérations :

1 - Densité de la roche pluvérisée : δ

Elle a été mesurée au pycnomètre suivant la méthode classique décrite et discutée par STRAKHOV (1957)

$$\delta = \frac{B}{A + B - C'}$$

δ = densité de la poudre
B = poids de la poudre sèche
A = poids du pycnomètre + eau
C' = poids du pycnomètre + eau + poudre

2 - Densité de la roche globale : d

Cette densité représente celle de la roche dans son ensemble, y compris ses pores et ses fissures.

On a utilisé la méthode décrite par BONIFAS (1959)

$$d = \frac{P}{\frac{Pp_1 - Pp_2}{Dt} - \frac{Pp_1 - P}{Dp}}$$

d = densité de la roche totale, dite "densité globale" ou "densité apparente"
P = poids de l'échantillon sec
Pp_1 = poids de l'échantillon paraffiné
Pp_2 = poids de l'échantillon paraffiné dans l'eau
Dt = densité de l'eau à la température de l'expérience
Dp = densité de la paraffine à la température de l'expérience.

On a constaté que les variations de Dt étaient négligeables ; on fait donc Dt = 1. Par ailleurs, la densité de la paraffine utilisée a été mesurée à la température ambiante : Dp = 0,906

3 - Calcul de la porosité

Il s'effectue par la formule simple :

$$P\ \% = \frac{\delta - d}{\delta} \times 100$$

Il est apparu que ces opérations comportaient deux sources d'erreur possibles : le séchage et le paraffinage. Elles ont été testées expérimentalement.

4 - La méthode de séchage

Quatre échantillons des forages de Logbaba ont été utilisés pour tester le rôle du séchage. Ils ont fait l'objet de mesures reportées sur le tableau II.

Il apparaît :

- que le séchage est indispensable. L'écart entre d et d_o est considérable pour un échantillon assez poreux.

- que le séchage à l'étuve est sensiblement plus efficace que le séchage dans un dessicateur (d < d'). La température choisie ne risque pas de modifier les minéraux argileux ; c'est d'ailleurs celle qui règne au fond des forages depuis un grand nombre de dizaine de millions d'années.

Tableau II

Mesure de la densité des roches. Influence de la méthode de dessication

Echantillons séchés dans l'étuve. 68 h à 110°

Références	P	Pp_1	Pp_2	d	d_o (non séché)	teneur en eau %
LA 102- 3	71,2	73,1	34,3	1,93	2,41	19,9
LA 104-11	84,2	86,4	51,9	2,61	2,68	2,6
LA 104-12	82,5	84,5	49,1	2,44	2,55	4,3
LA 104-17	117,4	120,6	73,1	2,64	2,70	2,2

Echantillons séchés sous vide. 71 h en présence de silicagels

Référence	P	Pp_1	Pp_2	d'
LA 102- 3	83,8	86,1	41,8	2,00
LA 104-11	84,0	86,2	52,1	2,64
LA 104-12	57,1	60,1	33,6	2,46
LA 104-17	104,1	106,0	65,3	2,69

5- Le paraffinage

Il est essentiel que la pellicule de paraffine qui enrobe l'échantillon soit aussi mince que possible de manière à isoler l'échantillon sans l'imbiber. L'échantillon est refroidi rapidement en air sec à

la sortie de l'étuve, puis trempé une seconde dans un bain de paraffine à une température à peine supérieure à celle de la fusion (54° C en l'occurence). Il se forme alors aussitôt une mince pellicule de paraffine qui représente 2 à 3 g de matière pour un échantillon d'une centaine de grammes.

II - L'EXTRACTION DE LA FRACTION ARGILEUSE

1 - Extraction de petites quantités pour la confection des agrégats orientés

L'échantillon est d'abord broyé au broyeur à billes Dangoumeau (Prolabo). La poudre obtenue est mise en suspension dans l'eau distillée et brassée à l'homogénéiseur MSE (O.S.I.). On décante par centrifugation à 2000 t/mn pendant 5 minutes. On remet le culot en suspension dans l'eau distillée, on brasse et on centrifuge de nouveau. On répète ces opérations en centrifugeant à 3000 t/mn pendant 10 minutes jusqu'à obtenir une suspension stable.

Des traitements spéciaux sont nécessaires pour éliminer certaines substances gênantes. Ils se font en grand volume, dans des béchers de 1000 cc pour éviter que la solution ne s'empoisonne.

L'élimination du carbonate de calcium est faite par attaque à HCl N/10 jusqu'à disparition complète de l'effervescence. L'agitation est très importante pendant l'opération car une attaque locale trop vive peut détériorer certains minéraux argileux. On vérifie que la solution reste acide lorsque l'effervescence a cessé. Il faut éliminer ensuite l'acide et le sel par lavage.

Elimination du sulfate de calcium par une solution concentrée de Na Cl (100 g/l), des oxydes, hydroxydes colloïdaux de fer, et fer amorphe par HCl, des hydroxydes d'aluminium et de l'aluminium amorphe par H_2SO_4, et de la silice amorphe par NaOH 10N.

La matière organique est éliminée par H_2O_2 à 20 volumes au bain-marie entre 70 et 100° C.

Saturation. Les diagrammes de diffraction de RX obtenus à partir de minéraux argileux gonflants varient suivant la nature des cations interfoliaires. Comme on ne sait pas, a priori, quel minéral on va trouver dans l'échantillon à analyser, il est plus prudent, afin d'éviter de devoir reprendre la préparation, de remplacer les cations interfoliaires originels des minéraux gonflants éventuels par un même cation. Ce remplacement appelé saturation a été fait avec les ions Mg^{++} et K^{+}.

Après la dernière décantation, le culot remis en suspension par agitation, est séparé en deux parties égales versées dans des flacons à bouchon hermétique. Ces deux fractions seront soumises à deux saturations différentes. On ajoute d'abord à la suspension quelques gouttes soit de KCl, soit de $MgCl_2$ pour faire floculer les particules pour pouvoir plus facilement décanter l'argile. On remplit le flacon aux 3/4 de KCl 0,1 N ou de $MgCl_2$ 1N. On bouche les flacons et les place dans un agitateur rotatif (40 t/mn) pendant une heure. Après cette agitation, on décante, on remet une solution fraîche et on agite à nouveau pendant une heure. Cette opération doit être renouvelée 3 fois. La suspension qu'on obtient à l'issue des divers traitements est siphonée sur 4 cm après 3 h 20 mn de sédimentation : la partie siphonée ne comprend que des particules inférieures à 2 microns (loi de Stokes). On verra plus loin comment cette suspension est utilisée pour la confection des agrégats orientés.

2 - Extraction de quantités plus importantes pour les besoins de l'analyse chimique, de l'analyse thermique différentielle ou de la diffractométrie (poudres)

Après broyage, on effectue comme précédemment les lavages et traitements nécessaires. Mais on opère sur de plus grandes quantités, dans des béchers de 2 litres. Le mixage est fait au mélangeur Dosapro à tête bicône pendant 5 minutes ; le lavage, à la centrifugeuse Moulinex. Le panier de centrifugation est garni de trois épaisseurs de papier filtre. Sous l'effet de la centrifugation, l'argile se dépose sur le papier filtre tandis que l'eau de la suspension s'écoule au travers. En pratique, les particules argileuses ne sont pas toutes arrêtées immédiatement et l'eau trouble qui a traversé est reversée dans la centrifugeuse. Lorsque cette eau est claire, on lave le dépôt d'argile à l'eau distillée. On détache ensuite la pâte d'argile du papier filtre pour la remettre en suspension dans de l'eau distillée par mixage pendant 5 minutes.

Si la solution est stable, on laisse sédimenter pendant 13 heures pour pouvoir pipeter les 16 premiers cm. Si la solution floculе, on recommence le lavage au Moulinex.

On passe enfin la solution pipetée dans la supercentrifugeuse Sharples à 30 000 t/mn pour obtenir un culot compact. Les inférieurs à 2µ sont ensuite séchés à l'étuve sous atmosphère contrôlée.

III - LA SEPARATION DE FRACTIONS MONOMINERALES

La connaissance précise de la cristallochimie des minéraux passe par l'analyse chimique de fractions minérales très pures. La séparation des minéraux des roches est maintenant couramment pratiquée dans les laboratoires de pétrographie des séries métamorphiques. Il est inutile de décrire ici les principales techniques utilisées. Elles sont exposées dans les traités récents (MÜLLER, 1964, 1967) ainsi que dans un nombre considérable de notes. Il faut citer pour les travaux français le manuel de GAGNY et NICOLAS (1966). J'indiquerai brièvement les techniques que j'ai mises en oeuvre, et j'évoquerai les problèmes posés par la purification des minéraux argileux.

1 - Cas général

Dans le cas général, tout travail de séparation des minéraux commence par le broyage et l'analyse granulométrique. On recherchera ensuite la tranche granulométrique la plus grosse, où les divers constituants minéraux de la roche sont toutefois déjà isolés en grains monominéraux. Le succès des opérations ultérieures dépend de deux choses essentielles :

- le tamisage doit être parfait ; tous les grains doivent être compris dans les limites de taille de la tranche granulométrique choisie ;

- tous les grains doivent être monominéraux.

Faute d'observer ces deux précautions les déboires seront constants et on perdra un temps considérable.

La plupart des roches traitées, schistes, quartzites et micaschistes, présentaient des fines syncristallisations de mica, de chlorite et de quartz. Il a fallu opérer sur des fractions fines. C'est la fraction 80 - 100 μ (N^{os} 20-21 AFNOR) qui a été choisie dans presque tous les cas. Au-dessous de 80 μ, le travail à sec sur les phyllosilicates devient très difficile : les particules sont chargées électriquement et collent les unes aux autres. Les poudres doivent être d'ailleurs soigneusement lavées à l'eau distillée dans les ultrasons jusqu'à ce que l'eau de lavage soit parfaitement limpide. On sèche ensuite la poudre à l'étuve.

Les techniques utilisées ensuite ont été les suivantes.

- Lévigation en colonne ascendante selon le schéma de GAGNY et NICOLAS (1966).
- Séparation magnétique en chute libre avec le séparateur FORRER (brevet CNRS).
- Séparation magnétique sur table vibrante (FRANTZ Isodynamic Separator, type L 1).
- Séparation en liqueurs denses.
  - . Liqueur de THOULET (iodomercurate de potassium. Prolabo)
    densité maximum à 15°C : 3,17
    solvant : eau
  - . Liqueur de ROHRBACH (iodomercurate de baryum. Touzard et Matignon)
    densité maximum à 15°C : 3,50
    solvant : eau.

Les avantages et les inconvénients de ces liquides sont exposés par GAGNY et NICOLAS (1966). Le passage en liqueur dense est indispensable pour obtenir des minéraux purs à 99 % dans les granulométries fines.

2 - Cas des granulométries comprises entre 50 et 2 microns (silts)

Les techniques pétrographiques classiques sont utilisables pour des grains d'un diamètre supérieur à 50 μ. Les argiles (< 2μ) font l'objet de méthodes très particulières qu'on évoquera plus loin. Entre 2 et 50 μ, les techniques d'analyses granulométriques ont fait des progrès récents qui devraient permettre d'étendre vers les petites tailles les possibilités de purification des minéraux. Il faut citer en particulier deux élutriateurs - centrifugateurs travaillant l'un à sec (BAHCO, Hjorth, Suède, fabriqué en France par NEU), l'autre en milieu liquide (CASTA, 1969), ainsi que les techniques décrites par WILDING (1965), NUCKOLLS et FULLER (1966), BEAVERS et JONES (1966).

3 - Cas des minéraux argileux

Les minéraux des argiles ont une taille inférieure au micron, en général. Il est convenu, dans certains laboratoires, de considérer comme "fraction argileuse" la fraction inférieure à 2μ. Cette tranche granulométrique, soumise aux traitements décrits plus haut, renferme essentiellement, en effet, des minéraux des argiles. Les impuretés les plus fréquentes sont le quartz et les oxydes du fer. Mais il est rare qu'un seul minéral des argiles soit présent. C'est même tout à fait exceptionnel dans la zone inférieure de diagenèse où illite et chorite sont régulièrement associées. J'ai cherché à isoler chacun de ces deux constituants, sans parvenir à les purifier assez pour que leur analyse chimique soit significative. Il me paraît cependant très important que des recherches dans ce sens se poursuivent et aboutissent, car seule la connaissance précise de l'évolution cristallochimique de chaque famille minérale permettra de trouver les lois qui régissent le mouvement des éléments chimiques dans cette partie du cycle géologique.

Les principales directions de recherche sont les suivantes :

- Centrifugation dans des liquides divers (LOUGHNAN, 1957; KONTA et BOROVEC, 1965; BUSCH, JENKINS et McCALEB, 1966; CHARM, 1967; KERN, 1967)
- Flotation (ABRAMOV, 1963)
- Comportement électrocinétique (BEAVERS et MARSHALL, 1951; HO et HANDY, 1964; McEVEN, 1964; OLIVIER et SENNETT, 1967)
- Comportement paramagnétique (PETERS et WUTHRICH, 1963; OSIPOV, 1965; 1968)
- Attaque chimique différentielle (BRINDLEY et YOUELL, 1951; FOLLETT, McHARDY, MITCHELL et SMITH, 1965; SEGALEN, 1968).

IV - MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

La fraction argileuse, isolée par les méthodes qu'on a décrites, est mise en suspension dans l'eau distillée. La suspension doit être très diluée, à peine opalescente en lumière transmise. La dispersion est assurée par agitation ultrasonique (appareil ULTRASONIC, France, type N 154) et, éventuellement, à l'aide de quelques gouttes d'ammoniaque et d'alcool éthylique à 90°. Ces suspensions NH_4, en milieu alcoolique, donnent une bonne dispersion de la matière minérale.

Les observations et les photographies ont été faites sur les microscopes PHILIPS EM 100, et EM 300.

V - DIFFRACTION DES RAYONS X

1 - Appareillage

Diffractomètre PHILIPS 1010

Fonctionnant sous 38 kV et 18 mA. Anticathode de cuivre (Cu Kα), filtre de nickel, fentes 2° - 0,1 mm - 2°, sensibilité 1 - 10^2 - 10 à 1 - 10^3 - 4 (le troisième chiffre est la constante de temps).

On a utilisé deux types d'enregistreur :

a) Enregistreur PHILIPS où l'étalement du diffractogramme est réalisé par le déroulement d'une bande de papier accordé à la rotation du goniomètre. On peut faire varier indépendamment ces deux conditions pour étudier plus finement des raies voisines. C'est ainsi que, dans bien des cas, la distinction entre kaolinite et chlorite a été faite par étalement des deux raies à 3,52 et 3,58 Å.

b) Enregistreur X-Y HEWLETT-PACKARD - Il a été réglé pour enregistrer entre 40 et 3 Å, soit environ 2 et 30° (2θ).

Les bornes sont calées électriquement et l'enregistrement se fait toujours dans le même sens, cela permet la superposition des diagrammes après chauffage et glycolage et facilite leur comparaison. On peut ainsi superposer sur un diagramme correspondant à un traitement donné, saturation K^+ par exemple, le diagramme correspondant au même échantillon saturé Mg^{++}. Il est enfin possible de superposer des diagrammes faits avec des anticathodes différentes.

Le papier utilisé sur cet enregistreur a été gradué directement en distances réticulaires (Å) (Compagnie Française des Diagrammes). Tous ces perfectionnements procurent un gain de temps considérable dans la lecture et l'exploitation des diagrammes.

2 - Diffractogrammes de poudres désorientées

La désorientation des poudres de roche totale, d'argiles, ou de minéraux purs broyés a été assurée par un tassement léger sur la lame porte-objet à l'aide de papier buvard. Les enregistrements ont été faits sur l'enregistreur PHILIPS, dans des conditions diverses, dépendant du but poursuivi.

Les diagrammes de poudre ont été réalisés dans quatre types de recherches.

a) Confirmation des déterminations faites sur des agrégats orientés. La pyrophyllite, par exemple, présente un pic de base à 9,2 Å qui peut se confondre avec celui du talc, de la clinoptilolite, de la laumontite, ou encore avec l'effet de pointe de certains interstratifiés. La présence de pyrophyllite a été confirmée par la recherche des raies éloignées vraiment caractéristiques.

b) Mesure précise de d(060) dont la valeur est liée au caractère dioctaédrique ou trioctaédrique des feuillets T-O-T. Le quartz, presque toujours présent, a été utilisé comme étalon pour cette mesure : d(211) du quartz = 1,541 Å.

c) Mesure de l'intensité relative des pics (001) liée à la constitution chimique des micas et des chlorites (BROWN, 1955; BRINDLEY et GILLERY, 1956).

d) Détermination des polymorphes des minéraux micacés.

Le polymorphisme des micas et des illites a été défini par HENDRICKS et JEFFERSON (1939), LEVINSON (1955) et SMITH et YODER (1956). Les minéraux micacés de la fraction argileuse des sédiments se rapportent essentiellement à trois types : 1Md, 1M et 2M. Leur détermination au sein des mélanges n'est pas aisée. Elle a fait l'objet de plusieurs tentatives (WARSHAW, 1960; VELDE et HOWER, 1963; MAXWELL et HOWER, 1967).

J'ai utilisé une méthode simple, semi quantitative, à partir du diffractogramme de poudre. La teneur globale en minéraux micacés est donnée par la hauteur du pic multiple à 4,46 Å. Le pourcentage de 1M est estimé par la hauteur des pics $11\bar{2}$ ou 112, respectivement à 3,36 et et 3,07 Å. Le pourcentage de 2M est estimé par la hauteur du pic 023 à 3,74 Å. Il est nécessaire d'étalonner les diffractogrammes à partir de mélanges artificiels. L'étalonnage reste valable ensuite tant que les conditions expérimentales restent les mêmes.

3 - Préparation et traitement des agrégats orientés

Des travaux récents ont montré l'influence exercée sur le diffractogramme par la méthode de préparation des agrégats orientés (STOLL, LUCAS, MILLOT et WEY, 1964; EHRMANN, 1967). Il est donc utile d'indiquer ici la méthode utilisée.

On part d'une suspension dont on siphonne les 4 cm supérieurs après 3 h 20 mn de sédimentation, de manière à ne recueillir que des particules inférieures à 2 μ. On procède ensuite différemment selon que la suspension est pauvre ou riche en particules.

a) Dépôt orienté par sédimentation. Ce procédé est utilisé pour les suspensions pauvres en particules fines.

Sur la surface d'une lame de verre, on imprime deux traits parallèles à l'aide d'une encre résistante à l'eau après séchage. Ces traits délimitent sur la lame la surface balayée par le faisceau de RX. A l'aide d'une seringue, on siphonne les 4 cm de suspension contenant les particules inférieures à 2μ et on répartit 0,3 cc entre les deux traits parallèles. On sèche ces dépôts à 40°C dans une étuve où l'humidité relative est maintenue par une solution saturée de nitrate d'ammonium à 50 %.

Il est intéressant de signaler les avantages que présente le dépôt entre les deux traits par rapport à un dépôt sur toute la surface de la lame :

- réduction importante du volume nécessaire

- dépôt homogène
- surface intégrale exposée au faisceau de RX.

Les deux derniers points sont importants car ils permettent d'obtenir des diagrammes plus représentatifs en réduisant l'action des facteurs qui perturbent l'homogénéité des dépôts, soit :

- la non horizontalité des lames pendant le séchage,
- la tension superficielle qui tend à accumuler l'argile sur les bords de la préparation.

b) Pâte orientée par étalement : procédé mis en oeuvre pour les suspensions riches en argiles.

La suspension siphonnée est centrifugée à 4000 t/mn pendant 10 minutes. Après décantation le culot est homogénéisé à la spatule et porté sur une lame de verre, dont la partie centrale, celle qui sera balayée par le faisceau de rayons X, a été creusée de 0,2 mm par meulage. La pâte ainsi déposée est étalée à l'aide de la tranche d'une lame de verre préalablement nettoyée et mouillée à l'eau distillée. On laisse sécher la lame à l'air libre.

L'avantage d'une telle méthode est de fournir des agrégats homogènes sur toute leur surface et dans leur épaisseur, sans aucune ségrégation des minéraux (GIBBS, 1965).

c) Traitements

Pour chaque suspension deux lames sont préparées. L'une est gardée comme témoin. L'autre est d'abord portée sur le diffractomètre (enregistrement N). Après enregistrement, elle est soumise aux vapeurs d'éthylène-glycol pendant 2 heures dans un dessicateur relié à une pompe à vide, puis remise sur le diffractomètre (enregistrement G). Enfin elle est chauffée à 490°C pendant 4 heures et soumise aux rayons X une troisième fois (enregistrement C).

4 - Mesure de la cristallinité de l'illite

La largeur des raies de diffraction d'un matériel cristallin dépend :

- de la taille des cristallites pour des tailles inférieures à 100 Å (GUINIER 1964, p. 462 et suivantes),

- de la régularité des réseaux, autrement dit de la "cristallinité" de la substance (GUINIER 1964, p. 305 et suivantes). Ce terme de cristallinité est d'usage courant en cristallographie, et on a tenté de définir des "indices de cristallinité" pour la cellulose (HERMANS et WEIDINGER, 1950).

Les particules d'illites ont une taille en général bien supérieure à 100 Å (0,01 µ), de sorte que la largeur de leurs raies de diffraction sera fonction de leur régularité cristalline. Une illite bien cristallisée donnera des raies étroites ; une illite désordonnée, au contraire, aura des pics de diffraction larges et irréguliers.

WEAVER (1960, 1961) mit à profit ces données cristallographiques en recherchant des variations de cristallinité dans les illites des sédiments primaires des Ouachita Mountains (USA). Il choisit la raie 001 (indices 1M, 10 Å) et exprima son acuité par le rapport A/B auquel il donna le nom de "sharpness ratio" qu'on traduit par "indice d'aigu" (fig. 5).

L'idée de WEAVER donna tout de suite des résultats remarquables et il fut possible, grâce à la cristallinité de l'illite, de définir dans les Ouachita Mountains des zones de recristallisation diagenétique et métamorphique plus ou moins poussée.

Cette méthode fut abandonnée aux Etats-Unis mais reprise en France dès 1963 aux Laboratoires de la Compagnie Française des Pétroles à Bordeaux, à l'Institut de Géologie de l'Université de Strasbourg, puis au Centre de Recherches de Pau (SNPA) (KUBLER 1964, 1966, DUNOYER et KUBLER, 1966; DUNOYER, ARTRU et FERRERO, 1966; DUNOYER, FERRERO et KUBLER, 1968; KUBLER, 1968; ESQUEVIN, 1969).

La technique de mesure de WEAVER a été abandonnée car elle s'est révélée peu fidèle. De plus, le rapport A/B devient très mal défini pour les fortes cristallinités où A est grand et B petit. Or ce sont précisément les fortes cristallinités, celles de la diagenèse poussée et du métamorphisme qu'on cherchait à mesurer.

Après une étude expérimentale très poussée, menée par KUBLER et FERRERO (KUBLER, 1966), le paramètre de cristallinité choisi a été la largeur à mi-hauteur (au-dessus du bruit de fond) du pic à 10 Å

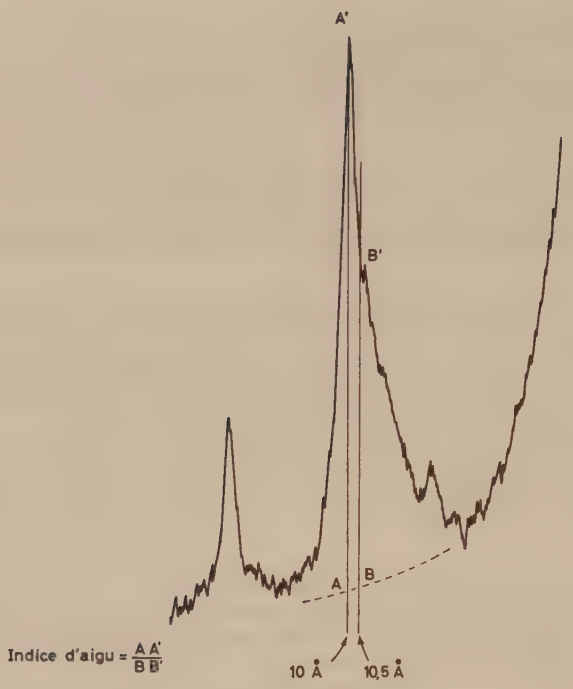


Fig. 5 - Caractérisation de l'illite par son "indice d'aigu" (sharpness ratio) selon WEAVER (1960).

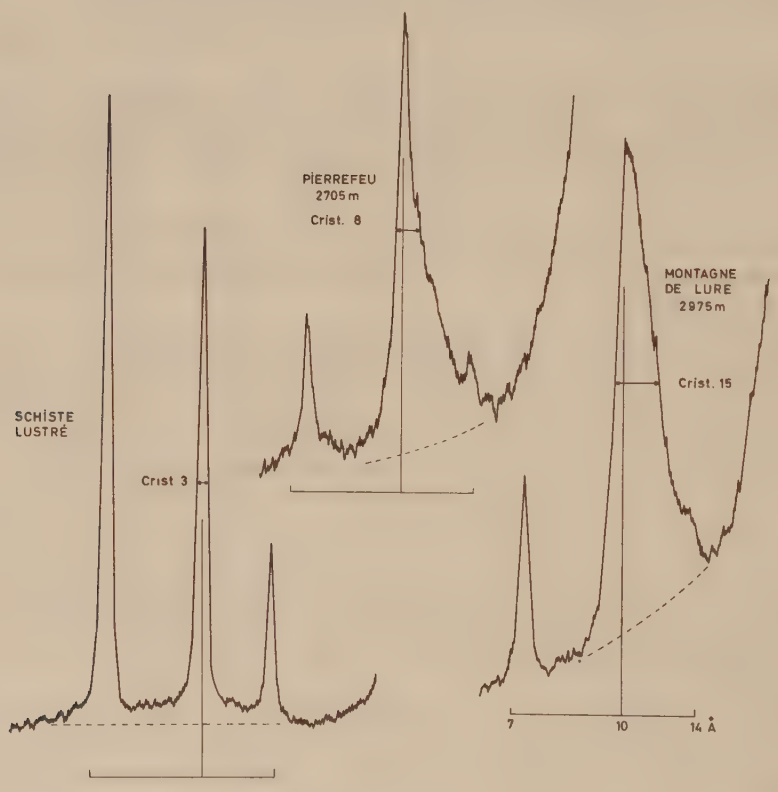


Fig. 6 - Cristallinité de l'illite. Exemples de diffractogrammes. L'indice de cristallinité (Crist.) correspond à la largeur du pic en mm pour certaines conditions expérimentales décrites dans le texte.

Indice de cristallinité = largeur à mi-hauteur du pic à 10 Å

Avantages et inconvénients d'un tel indice

Avantages :

- Rapide et facile à mesurer
- Indépendant de la fluctuation statistique du diffractomètre
- Indépendant de la hauteur du pic pour une hauteur supérieure à 3 cm
- Indépendant du mode de préparation de l'agrégat argileux.

Inconvénients :

- Cet indice est une valeur absolue. Il dépend donc des conditions expérimentales et, en particulier, de l'étalement du diagramme.

- Cet indice croît lorsque la cristallinité décroît et inversement.

Il est donc absolument nécessaire de définir exactement les conditions expérimentales auxquelles correspondant les indices qui seront donnés dans ce mémoire.

Indice de cristallinité. Conditions expérimentales.

- Diffractomètre PHILIPS 1010, 38 kV, 18 mA, Cu Kα, filtre Ni, fentes 2 - 0,1 - 2, sensibilité $1\text{-}10^{2}\text{-}10$ à $1\text{-}10^{3}\text{-}4$

- Enregistreur X-Y Hewlett-Packard réglé pour 10° (2θ) = 86,1 mm.

La figure 6 donne quelques exemples de morphologie de pics d'illite et les indices de cristallinité correspondants.

Un nombre croissant de laboratoires s'intéressent à une telle mesure. Il serait souhaitable que des accords soient pris pour que les indices de cristallinité soient, sinon uniformes, du moins facilement comparables.

Notons enfin qu'une telle technique de mesure de la largeur des raies de diffraction a été utilisée pour évaluer la taille des cristallites, lorsque cette taille est inférieure à 100 Å (0,01μ) (GUINIER, 1964, p. 462). On peut citer les résultats de ROMERO et SABATIER (1962) sur les illites de certains schistes des Pyrénées orientales, et ceux de GRIFFIN (1967) sur les particules de graphite dans les séries sédimentaires légèrement métamorphisées.

VI - ANALYSE CHIMIQUE DES CONSTITUANTS MINERAUX MAJEURS

1 - La perte au feu. Après séchage à l'étuve à 110°C, l'échantillon est calciné à 1000°C jusqu'à poids constant. La perte de poids au cours de cette calcination est la "perte au feu". Elle représente essentiellement $H_2O^{(+)}$ et CO_2.

2 - Si, Al, Mg, Ca, Fe, Mn, Ti, sont dosés par spectrométrie. L'appareil utilisé est un spectromètre à lecture directe (quantomètre SOFICA-ARL). La méthode expérimentale a été décrite en détail (ATAMAN, 1963, 1966; BESNUS, 1967).

3 - Les alcalins Na et K sont dosés par spectrométrie de flamme avec l'appareil "Electro-Synthèse" type Phf 56.

Les raies utilisées sont 5890,0 Å pour le sodium, 7664,9 Å pour le potassium. La précision est de 5 % pour Na_2O et de 10 % pour K_2O.

TROISIÈME PARTIE

ÉTUDE DE QUELQUES SÉRIES SCHISTEUSES D'EUROPE ET D'AFRIQUE

CHAPITRE I
LES FORAGES DE LOGBABA (BASSIN DE DOUALA, CAMEROUN)

Les forages de Logbaba, distants les uns des autres de quelques centaines de mètres, furent implantés à dix kilomètres au sud-est de Douala, au Cameroun (fig. 7). Ils débutèrent le 13 mars 1955 avec LA 101 et s'achevèrent le 22 août 1957 avec LA 104.

La Société de Recherche et d'Exploitation de Pétrole du Cameroun (SEREPCA), par l'intermédiaire du Bureau de Recherches de Pétrole (BRP), a confié l'étude des minéraux argileux de ces forages au Laboratoire de Géologie de la Faculté des Sciences de Strasbourg. Je tiens à remercier ces deux organismes qui ont permis la publication des premières données (DUNOYER 1964), ainsi que la société ELF qui autorise aujourd'hui la mise à jour des derniers résultats.

I - HISTOIRE GEOLOGIQUE DU BASSIN DE DOUALA

La géologie du Cameroun a fait l'objet de mises au point cartographiques et bibliographiques successives, les dernières en date étant celles de GAZEL, HOURCQ et NICKLES (1956) et de GAZEL (1960).

Pour les domaines sédimentaires, dont il sera question ici, il faut citer HOURCQ (1956) et REYRE (1966).

Le travail de REYRE résume l'histoire géologique du bassin de Douala. J'y renvoie le lecteur, me contentant ici de dégager les grands traits indispensables pour comprendre la genèse des séries (fig. 8 et 9).

C'est vraisemblablement à l'Albien que la sédimentation a débuté, encore qu'aucun argument paléontologique ne puisse permettre de l'affirmer. Durant l'Albien et le Cénomanien se dépose une série continentale azoïque, dite "grès de base", pouvant atteindre jusqu'à 700 m d'épaisseur. Les apports viennent de l'est, puis du nord-est, à la suite d'un premier soulèvement de la zone cristalline centrale de l'Adamaoua.

Avec le Turonien et le Coniacien apparaissent des faciès néritiques, puis marins, les zones d'érosion étant situées à l'est de l'actuel bassin de Douala.

Ce n'est qu'au Santonien, au Campanien et au Maestrichtien que le bassin de Douala s'individualise en une zone subsidente marine, alimentée du nord-est par l'érosion puissante qui accompagne le soulèvement des plateaux de l'Adamaoua. La flexuration est intense : le Crétacé supérieur qui a 2800 m d'épaisseur à Logbaba est réduit à 1400 m à Pibissou, 10 km plus au nord.

Après une lacune du Maestrichtien supérieur, la sédimentation se poursuit durant le Paléocène, détritique et marin dans la région de Douala, suivi par une lacune assez générale de l'Eocène et de l'Oligocène.

Au Miocène inférieur, la reprise de l'épirogenèse entraîne une nouvelle sédimentation détritique associée aux produits volcaniques du Mont Cameroun dont les premières manifestations certaines datent du Burdigalien inférieur.

Pliocène et Pléistocène sont marqués par une épirogenèse complexe, active, mise en oeuvre par le jeu de deux flexures de caractères bien différents.

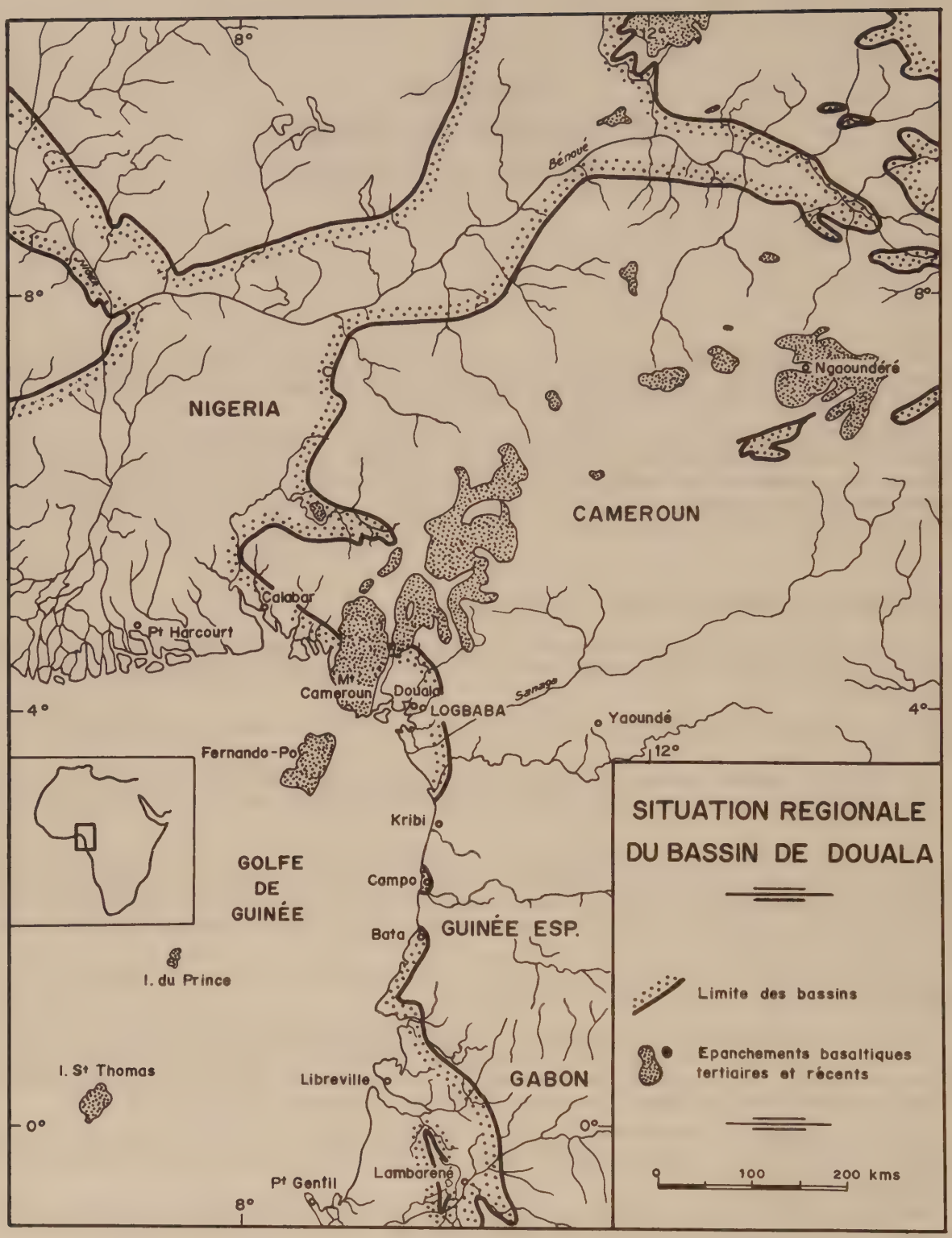


Fig. 7 - Situation des forages de Logbaba (Bassin de Douala, Cameroun).

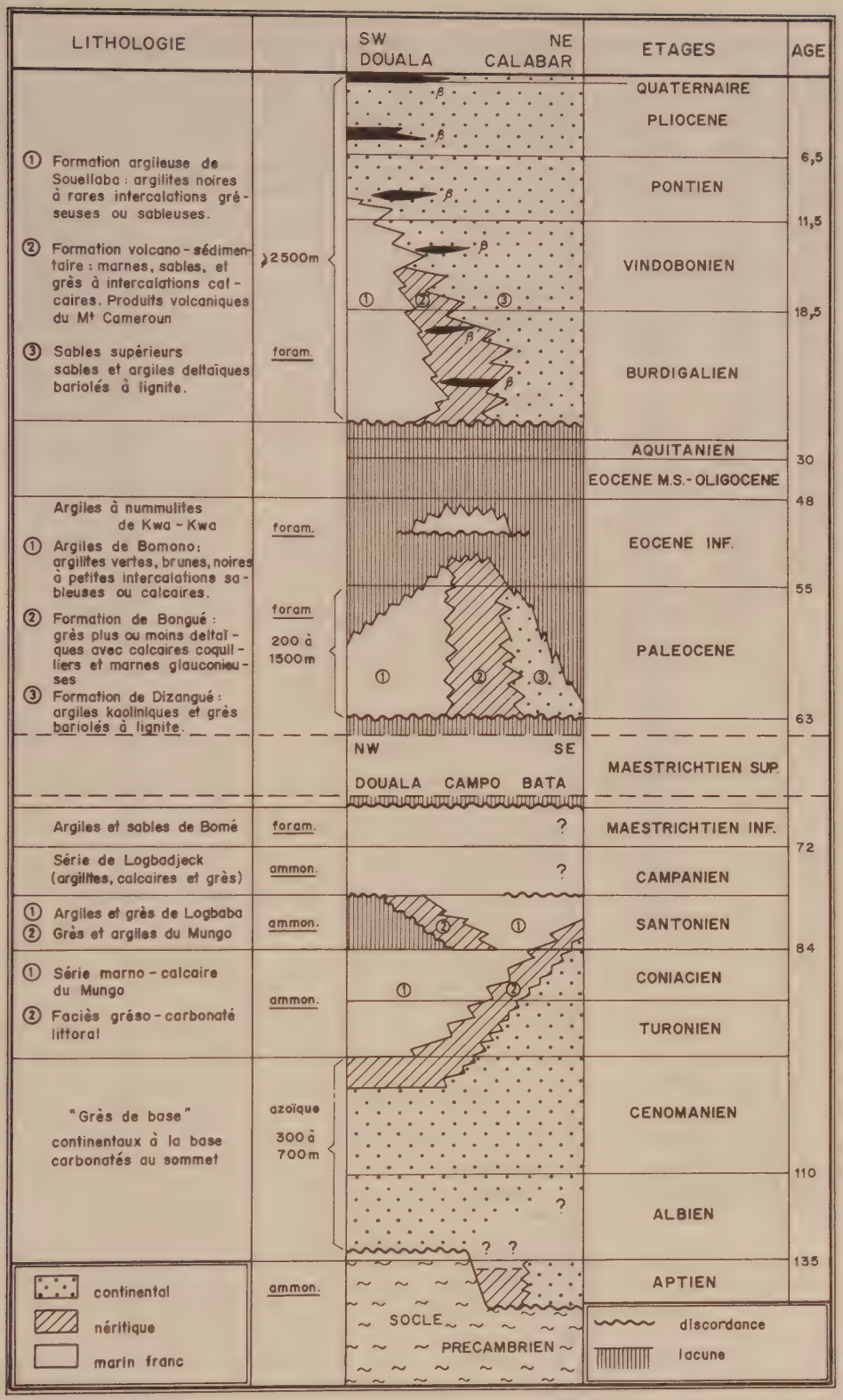


Fig. 8 - Les formations secondaires et tertiaires dans le bassin de Douala, d'après REYRE (1966).

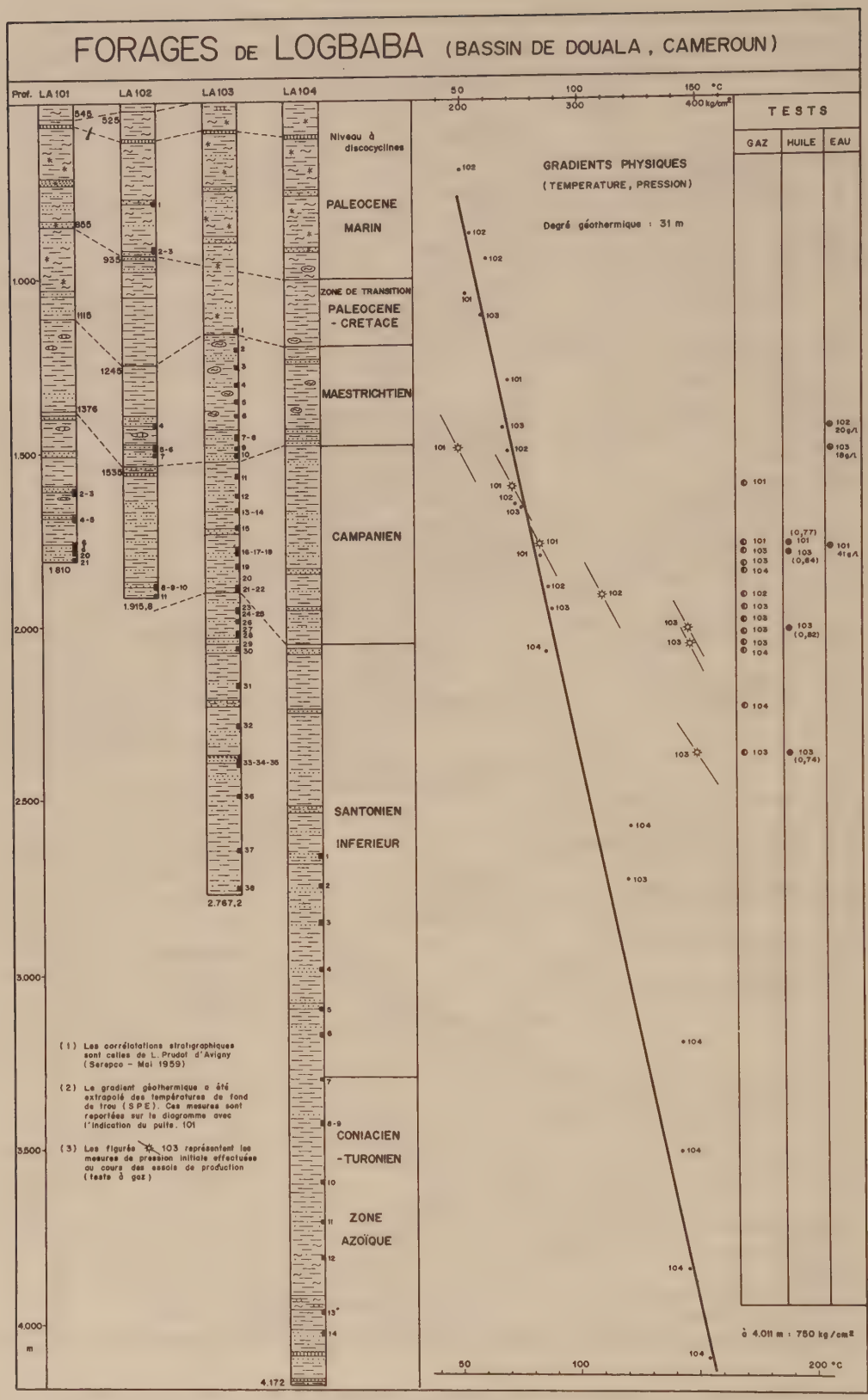


Fig. 9 - Forages de Logbaba. Coupe lithologique, échantillonnage, mesures effectuées en cours de forage.

Fig. 10 - Forages de Logbaba. Analyses minéralogiques et géochimiques.

1 - Un grand accident SW-NE est jalonné par les alignements volcaniques des îles Annobon, Sao-Thome, Principe, Fernando-Po, puis par le Mont Cameroun et les reliefs volcaniques qui surmontent les plateaux cristallins de l'Adamaoua. REYRE a nommé "arc de l'Adamaoua" cette importante cassure. Il s'agit d'un grand accident sous-crustal puisqu'il se prolonge loin sous l'Atlantique sud en direction de l'île de Sainte-Hélène. Vers le nord-est on peut le retrouver au delà des bassins du Tchad et du Niger dans les manifestations volcaniques du Tibesti associées à des fractures du socle d'orientation SW-NE. Malgré son extension aussi considérable cette dislocation ne semble pas avoir joué un rôle important dans la paléogéographie du bassin de Douala avant la fin du Tertiaire.

2 - La flexure continentale a permis au domaine océanique d'empiéter sur l'actuel domaine continental au cours des périodes de fonctionnement du bassin de Douala. Tantôt nord-sud, tantôt nord ouest-sud est, elle a règlé la subsidence dans les zones de sédimentation. Les profils sismiques au large de Douala montrent un talus continental actuel situé à une cinquantaine de kilomètre du rivage. Ce talus est une forme d'accumulation où, sur près de 1000 m d'épaisseur les sédiments se sont superposés, dessinant un plateau dont le rebord s'est éloigné du rivage au cours des temps. L'inclinaison des couches les plus récentes laisse à penser que la flexuration est encore active aujourd'hui.

II - LA SERIE TRAVERSEE PAR LES FORAGES DE LOGBABA

Les conditions générales de la sédimentation dans le bassin de Douala viennent d'être évoquées (fig. 8). Une analyse lithologique plus détaillée est maintenant nécessaire pour connaître le contexte sédimentologique des minéraux argileux dont nous cherchons à préciser l'histoire. Les coupes lithologiques sont données sur la figure 9.

Pour lever l'imprécision que peuvent entraîner les variations de faciès à l'échelle décimétrique, non représentable sur la figure 9, une description sommaire de chaque échantillon étudié est donnée ci-dessous.

Forage LA 101

Carotte n°	Profondeur	Lithologie
1	1410,80 m	Argile noire finement fragmentée.
2	1598,00	Argile à laminations de siltstone compact.
2	1599,00	Grès très fin et siltstone très compact.
4	1688,00	Argile micacée très compacte à intercalations silteuses.
4	1689,50	Siltstone compact à laminations argileuses.
17	1793,50	Siltstone compact à rares laminations argileuses.
21	1809,50	Argile plastique durcie par la dessication.

Forage LA 102

Carotte n°	Profondeur	Lithologie
1	778,50 m	Argile lamelleuse compacte.
2	911,00	Argile marneuse indurée homogène.
3	913,50	Brèche marneuse à éléments divers (graviers, coquilles).
3	915,00	Marne noire compacte grumeleuse.
7	1495,00	Grès très fin à siltstone carbonaté compact.
7	1497,00	Argile marneuse brune à lentilles indurées.
10	1884,50	Grès très fin à siltstone en bancs centimétriques interstratifiés d'argile.
10	1885,00	Argile noire.

Forage LA 103

Carotte n°	Profondeur	Lithologie
1	1151,20 m	Argile noire écailleuse à plans de friction.
2	1204,00	Argile noire feuilletée.
3	1254,00	Argile noire feuilletée à zones ocres ferrugineuses.
5	1350,00	Argile feuilletée légèrement charbonneuse.
7	1441,50	Grès très fin micacé à ciment siliceux.

Carotte n°	Profondeur	Lithologie
8	1451,70 m	Argile grumeleuse légèrement feuilletée et charbonneuse.
10	1502,00	Grès fin à très fin beige clair.
10	1502,50	Argile feuilletée à laminations silteuses.
11	1564,50	Argile noire écailleuse à tendance charbonneuse.
13	1665,00	Alternance milli-à centimétrique de grès très fins et d'argile.
13	1667,00	Argile noire à plans de friction et à tendance charbonneuse.
17	1785,50	Grès fin à moyen cimenté mal calibré.
17	1786,00	Argile feuilletée noire.
20	1878,40	Argile marneuse, feuilletée noire très indurée.
26	1981,50	Grès très fin à minces passées argileuses.
29	2039,00	Grès fin carbonaté gris.
29	2040,60	Argile feuilletée noire.
30	2061,50	Grès très fin carbonaté.
31	2067,60	Argile noire boudinée feuilletée.
32	2278,70	Argile fissile noire.
32	2280,50	Grès dolomitique noirâtre très compact.
33	2371,00	Grès grossier conglomératique.
35	2377,00	Argile fissile à plans lustrés.
36	2488,50	Argile feuilletée noire boudinée (lits gréseux très fins)
36	2489,20	Grès très fin très compact.
37	2644,00	Argile feuilletée boudinée noire.
38	2746,00	Argile noire micacée compacte légèrement silteuse.

Forage LA 104

A l'exception de deux échantillons gréseux (carotte n° 1, 2657 m de profondeur, et carotte n° 14, 4017,5 m de profondeur) le lithofaciès est très constant. Il s'agit d'argilite gris-noir feuilletée, plus ou moins chargée de silt, de fins micas, de pyrite, et plus ou moins marneuse.

La situation des échantillons est la suivante :

Tableau III

Forage LA 104. Situation des carottes

Carotte	Profondeur	Carotte	Profondeur	Carotte	Profondeur
1	2655	5	3094,5	10	3586
1	2657	5	3095,7	10	3587
2	2741,5	6	3162	11	3702
2	2742	7	3293	11	3702,5
3	2854	7	3293,5	12	3802
3	2855,7	8	3423	13	3956
4	2977,8	9	3425	14	4017,5
4	2978,8			14	4018,5

III - DONNEES PETROGRAPHIQUES

L'étude des lames minces a été entreprise dans le but de préciser le faciès sédimentaire défini par les géologues lors des sondages. Elle a permis en outre de contrôler la régularité des conditions sédimentologiques qui sera une des hypothèses utilisées dans l'interprétation de la minéralogie des argiles. Enfin l'examen des micas détritiques a révélé l'existence d'un certain nombre de phases d'altération au cours de la diagenèse.

1 - L'analyse par comptage de point des faciès gréseux

Elle nous apporte des précisions sur les proportions relatives des divers éléments (tableau IV).

L'examen de ces chiffres conduit aux conclusions suivantes :

1) La constance du quartz et du feldspath est un argument en faveur de la constance des sources d'alimentation et des conditions d'altération. On est ainsi confirmé dans l'idée que les minéraux argileux détritiques avaient, à l'origine, la même composition minéralogique.

Tableau IV

LOGBABA. Analyse minéralogique par comptage de points sur les niveaux gréseux du forage LA 103

Profondeur	Quartz	Feldspaths	Micas	Divers	Argiles	Calcite	Vide	TOTAL
1441,5 m	518	163	53	0	236	0	30	1000
1502	292	45	94	0	410	0	159	1000
1665	378	154	17	0	416	0	35	1000
1981,5	511	158	8	2	321	0	0	1000
2039	620	165	7	4	201	3	0	1000
2061,5	516	195	7	4	274	4	0	1000
2280,5	594	165	9	0	0	232	0	1000
2489,2	646	157	12	0	71	114	0	1000

2) La cimentation est assurée par des argiles dans les deux tiers supérieurs puis par de la calcite plus bas. On peut y voir un changement dans les conditions de dépôt, ou bien un phénomène secondaire, diagenétique, provoquant une cimentation carbonatée dans les zones les plus profondes. La seconde hypothèse s'avère être la plus vraisemblable étant donné que les solutions interstitielles sont de plus en plus concentrées vers la base de la série (voir p. 77).

3) L'annulation rapide des espaces vides traduit la compaction et la cimentation.

4) Les micas détritiques, muscovite et biotite, se font plus rares vers le fond. Les observations qui suivent montrent que leur présence était constante à l'origine, mais que leur dégradation sous l'action des solutions interstitielles est de plus en plus poussée au fur et à mesure que progresse la diagenèse d'enfouissement.

2 - L'altération diagénétique des micas détritiques

Elle peut se suivre au microscope et se révèle assez complexe :

La muscovite subit au sein des grès une exfoliation accompagnée de la néoformation soit de dickite, soit de chlorite ; dans les argiles elle se transforme en ensembles alternant de chlorite et de mica, puis en ballonnets de chlorite ; en présence de calcite l'altération est presque nulle.

La biotite suit deux itinéraires : soit une décoloration, une exsudation du fer et une évolution identique à celle de la muscovite ; soit une "amorphisation" progressive par perte des contours, des clivages, du pléochroïsme, de la biréfringence. Le fer se concentre en granulations sphériques.

IV - LES PHENOMENES DE COMPACTION

Des mesures de densité, de porosité, de perméabilité horizontale et verticale ont été effectuées en cours de forage. On n'a retenu ici que les densités et les porosités relatives aux faciès argilo-silteux fins (tableau V).

La figure 11 fait apparaître un gradient de densité qui n'a pas la netteté qu'on aurait pu attendre, étant donné le comportement habituel de tels faciès enfouis à de telles profondeurs (WELLER, 1959; ROUKHINE, 1961).

Une série de mesures ont été alors entreprises en choisissant des faciès strictement comparables du haut en bas de la série et en opérant de façon systématique selon la méthode simple exposée p. 45. Les résultats sont reportés sur la figure 12. A partir de la profondeur de 2000 m environ, c'est-à-dire de la base du Campanien, la corrélation profondeur-densité est assez bonne, exprimant les progrès de la compaction en fonction de l'enfouissement.

V - LES MINERAUX ARGILEUX

Les associations argileuses dans les forages de Logbaba sont déjà connues dans leurs grandes lignes (DUNOYER, 1964; DUNOYER, FERRERO et KUBLER, 1968). Le perfectionnement apporté

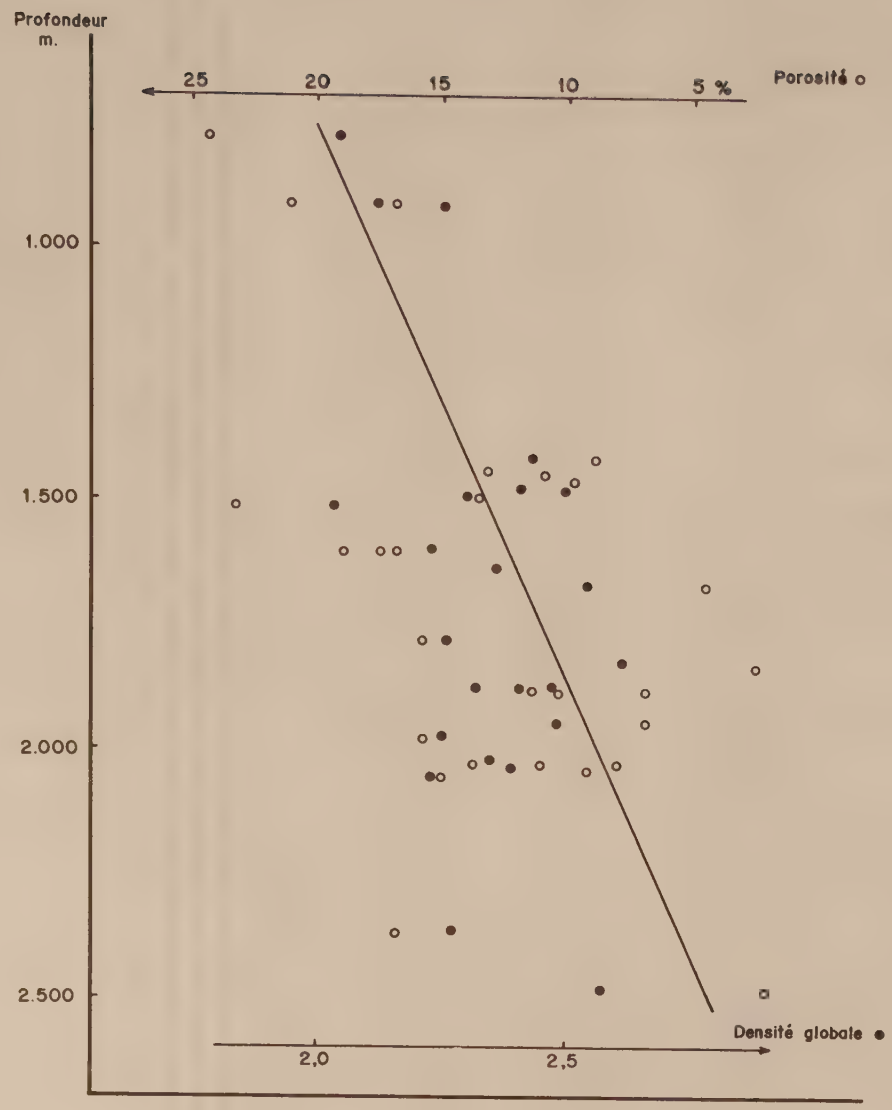


Fig. 11 - Forages de Logbaba. Densité globale et porosité des roches (mesures SEREPCA).

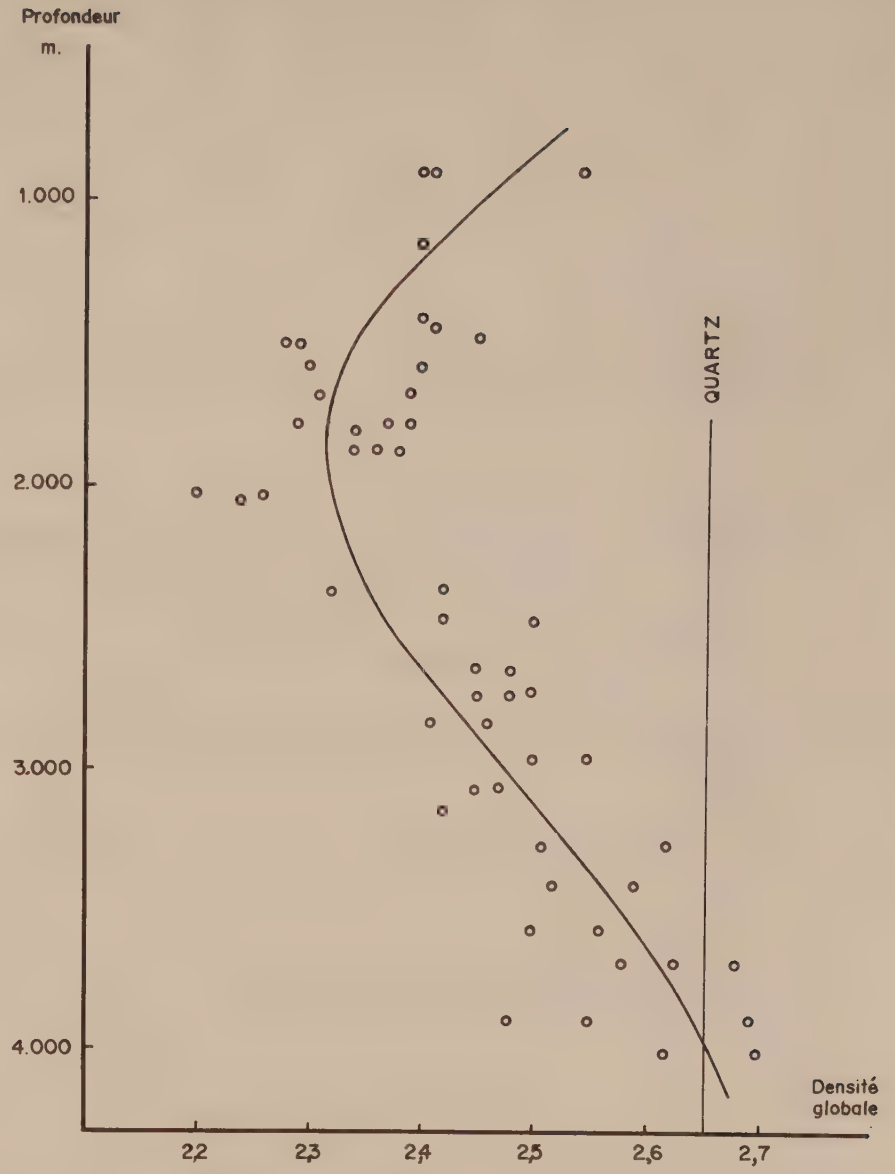


Fig. 12 - Forages de Logbaba. Densité globale des échantillons secs dans les faciès argilo-pélitiques.

Tableau V

LOGBABA. Mesures de densité et porosité en coûrs de forage

Carottes	nombre de mesures	Densité (échantillon sec)	Porosité %
LA 101 - 2	6	-	18,9
3	4	2,23	17,3
3	2	-	16,8
LA 102 - 1	11	2,04	24,3
2	2	2,12	21,1
3	6	2,25	16,9
4	6	2,43	8,9
5	15	2,41	10,9
6	2	2,50	9,7
7	19	2,30	13,6
8	6	2,47	6,8
9	13	2,32	11,4
10	8	2,41	10,5
LA 103 - 7	3	2,36	13,1
10	14	2,03	23,3
13	-	2,54	4,4
17	5	2,26	15,7
19	4	2,61	2,4
24	2	2,48	6,9
26	8	2,25	15,7
27	3	2,35	13,7
28	9	2,45	7,9
29	9	2,39	9,0
30	7	2,23	14,9
33	3	2,28	16,7
36	3	2,57	1,7

peu à peu aux techniques d'analyse minéralogique m'a incité à reprendre récemment les déterminations. Le schéma d'interprétation proposé en 1962 demeure inchangé dans ses grandes lignes. Seules des modifications de détail interviennent. Elles représentent un progrès. Ce sont donc les résultats les plus récents qui seront exposés ici (fig. 10).

1 - La montmorillonite

On l'observe dans le haut du forage, surtout entre les profondeurs de 900 et 1200 m, ce qui correspond à la zone de transition Crétacé-Paléocène. Elle disparait totalement entre les cotes - 1400 et - 1500, dans le Maestrichtien ; la température actuelle est de 70°C et la pression de 210 kg/cm^2.

C'est une montmorillonite à 14 Å passant à 10 Å au chauffage et à 17 Å au traitement par l'éthylène-glycol (fig. 13). Sa présence au sein d'un mélange de minéraux ne permet pas de la caractériser chimiquement, mais le comportement de ses interfoliaires en fait normalement un membre de la famille des montmorillonites : la saturation par K^+ réduit à 12 Å l'épaisseur des feuillets dans l'eau, sans pour autant empêcher un gonflement à 17 Å par l'éthylène-glycol.

2 - Les interstratifiés gonflants

Ils constituent l'essentiel de la fraction argileuse, ainsi qu'on peut le voir sur la figure 10. Ils apparaissent vers 1200 m de profondeur, prenant le relais de la montmorillonite et se maintiennent jusque vers 4000 m, passant à l'illite. Il faut voir là une série continue allant de la montmorillonite à l'illite en passant par une gamme d'interstratifiés où la proportion de feuillets gonflants diminue progressivement avec l'enfouissement pour s'annuler dans l'illite.

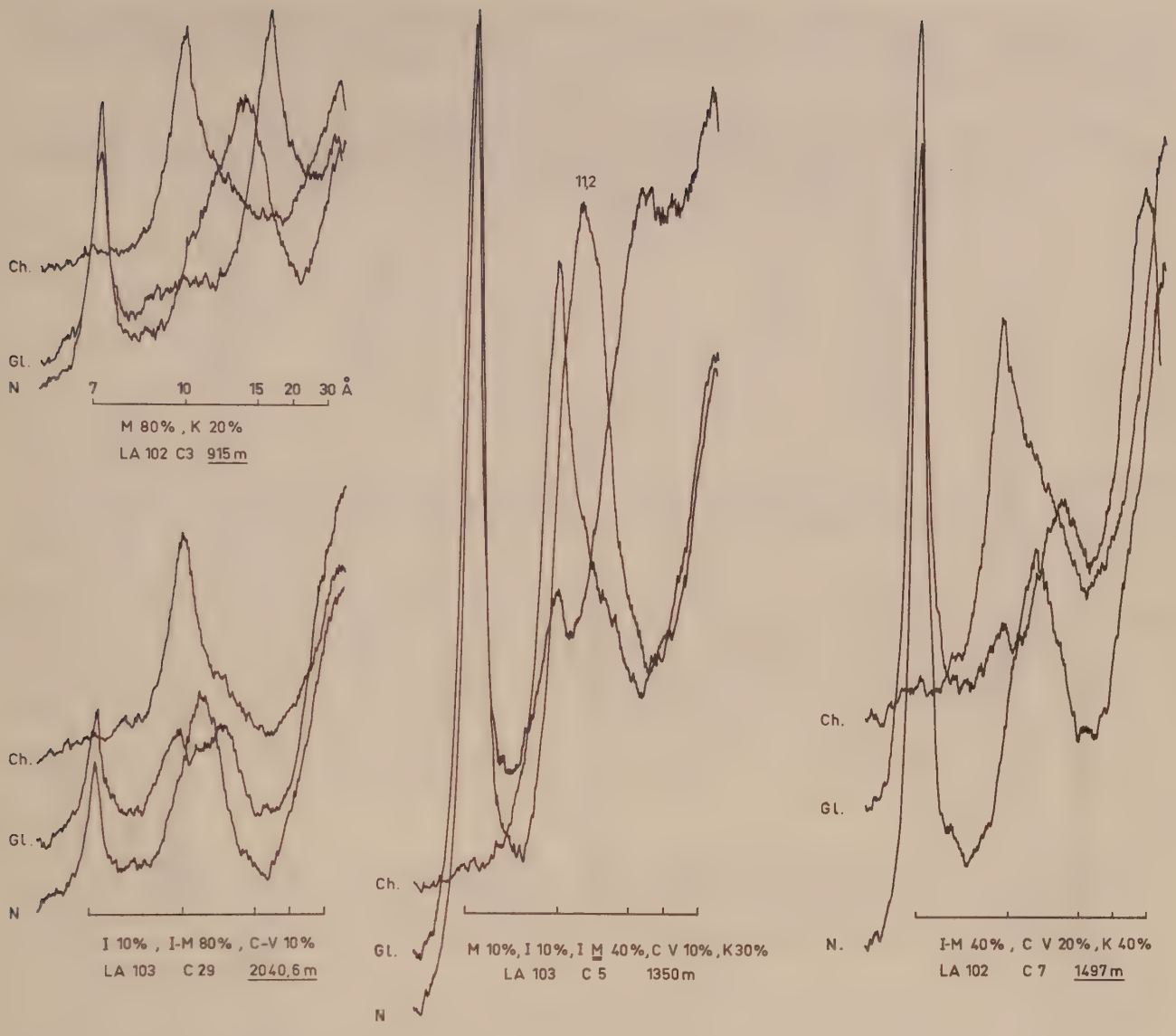


Fig. 13 - Forages de Logbaba.. Diffractogrammes caractéristiques.

Fraction < 2 µ décarbonatée (HCl, N/10) non saturée.

Enregistrement X-Y Hewlett-Packard 1°/minute.

N : argile non traitée.

Ch : argile chauffée à 490° C pendant 4 h.

Gl : argile traitée à l'éthylène-glycol.

(M montmorillonite, I-M interstratifié illite-montmorillonite, C-V interstratifié chlorite-vermiculite, I illite, K kaolinite, C chlorite).

Cette continuité est un des faits marquants de la coupe de Logbaba. La figure 10 tente de la rendre apparente par la transition réalisée entre le figuré illite-montmorillonite et le figuré illite. En outre, on a classé ces interstratifiés gonflants en cinq catégories distinctes par leur capacité de gonflement. Elles s'enchaînent assez régulièrement du haut en bas de la série depuis

la montmorillonite jusqu'à l'illite. Précisons aussi que ces minéraux ont un caractère franchement dioctaédrique : d(060) est toujours très voisin de 1,500 Å, à 0,005 Å près. La distinction avec la raie semblable de la kaolinite a presque toujours été possible, celle-ci s'établissant à 1,490 Å ± 0,002.

Enfin pour que la schématisation proposée ne donne pas au lecteur des idées trop éloignées de la réalité, j'ai reproduit les diffractogrammes les plus typiques de cette série continue

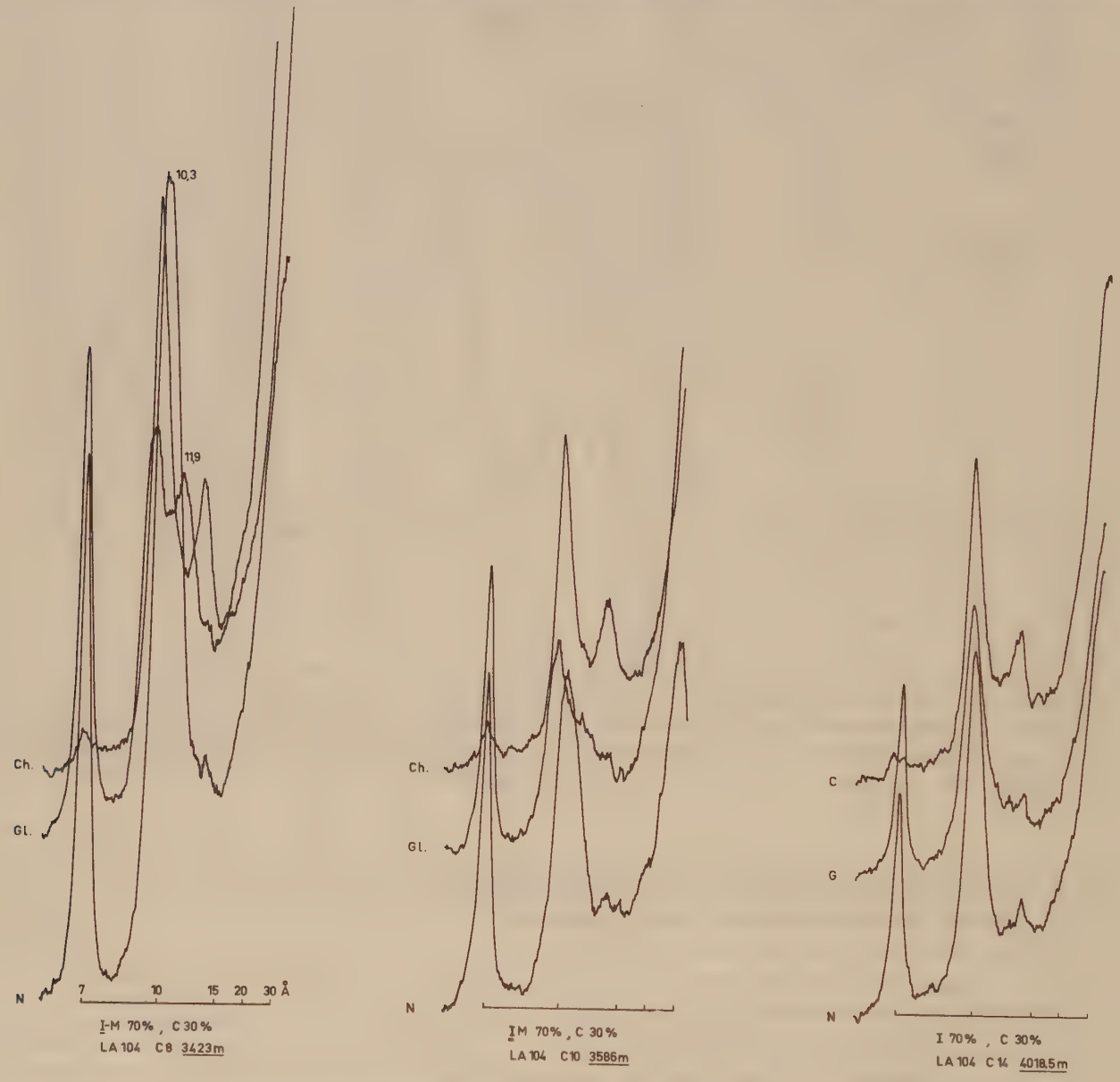


Fig. 14 - Forages de Logbaba. Diffractogrammes caractéristiques (suite et fin).

Fraction <2μ décarbonatée (HCl, N/10) non saturée.

Enregistrement X-Y Hewlett-Packard 1°/minute.

N : argile non traitée.

Ch : argile chauffée à 490° C pendant 4 h.

Gl : argile traitée à l'éthylène-glycol.

(M montmorillonite, I-M interstratifié illite-montmorillonite, C-V interstratifié chlorite-vermiculite, I illite, K kaolinite, C chlorite).

(fig. 13 et 14). Des pics de surstructure apparaissent souvent, faibles entre 20 et 25 Å, très bien marqués entre 30 et 40 Å.

Tableau VI

LOGBABA. Séquence des interstratifiés gonflants depuis la montmorillonite jusqu'à l'illite

Profondeur	Type	d(001) normal	d(001) glycol	d(001) chauffé
915 m	M	14 Å	17 Å	10 Å
1350	I-M	11,5	17	10
1497	I-M	12	14	10
2041	I-M	11	12,5	10
3423	I-M	10,5	12	10
3586	I-M	10,5	12 (palier)	10
4019	I	10	10	10

3 - L'illite

Une méthode simple pour évaluer le degré d'interstratification de l'illite consistait à mesurer l'épaisseur du pic voisin de 10 Å par la méthode de WEAVER ou par celle de KUBLER (voir p. 51). Les résultats de cette mesure ont été déjà présentés (DUNOYER, FERRERO et KUBLER, 1968). Nous les rappelons ici (fig. 15).

La largeur des pics à 10 - 12 Å a été nommée "cristallinité de l'illite" dans la note citée plus haut. En fait, la dernière étude, plus fine, des minéraux argileux a montré que l'illite n'était représentée en tant que telle que tout à fait à la base du forage. Les chiffres de la figure 15 gardent tout leur intérêt, mais ils ne représentent pas une variation de l'illite s.s. Ils représentent la variation du complexe interstratifié illite-montmorillonite, dont le pic normal se situe entre 10 et 12 Å, et où l'illite devient peu à peu prédominante.

Cette illite présente au fond du forage une "cristallinité" de 9, un rapport d'intensité 002/001 de 0,25, et une distance d(060) = 1,502 Å.

4 - La chlorite

La remise à l'étude des minéraux argileux de Logbaba a confirmé la répartition de la chlorite telle qu'elle a déjà été exposée (DUNOYER, 1964; DUNOYER, KUBLER et FERRERO, 1968). Irrégulièrement présente, peu stable au chauffage dans la partie supérieure de la série, elle devient importante et régulière vers la base du forage en même temps qu'elle voit augmenter sa stabilité au chauffage.

Cette instabilité se traduit sur les diagrammes par une rampe entre 10 et 14 Å après chauffage. Il est logique de nommer chlorite-vermiculite ces minéraux à 14 non gonflants, partiellement instables au chauffage (fig. 13). Ils s'effacent peu à peu vers le bas du forage pour faire place à une chlorite typique (fig. 14).

La distinction entre kaolinite et chlorite a été facilitée dans la plupart des cas par la séparation des pics à 3,52 et 3,58 Å.

5 - La kaolinite

Sa répartition est très claire (fig. 10). Elle occupe uniquement la partie haute de la zone échantillonnée où elle est un des constituants majeurs. Sa cristallinité est assez élevée et constante. Elle disparaît rapidement et définitivement entre 1900 et 2000 m de profondeur, vers la base du Campanien. La température actuelle est de 90°C, et la pression de l'ordre de 340 kg/cm^2.

6 - La dickite

C'est au microscope qu'elle a été pressentie, dans un niveau gréseux où elle se développe en remplissage de pores, formant de larges cristaux en éventails atteignant 20 microns. L'aspect pétrographique est très voisin de celui qu'on a observé dans les grès paléozoïques d'Hassi-Messaoud (FERRERO et KUBLER, 1964; CASSAN et LUCAS, 1966).

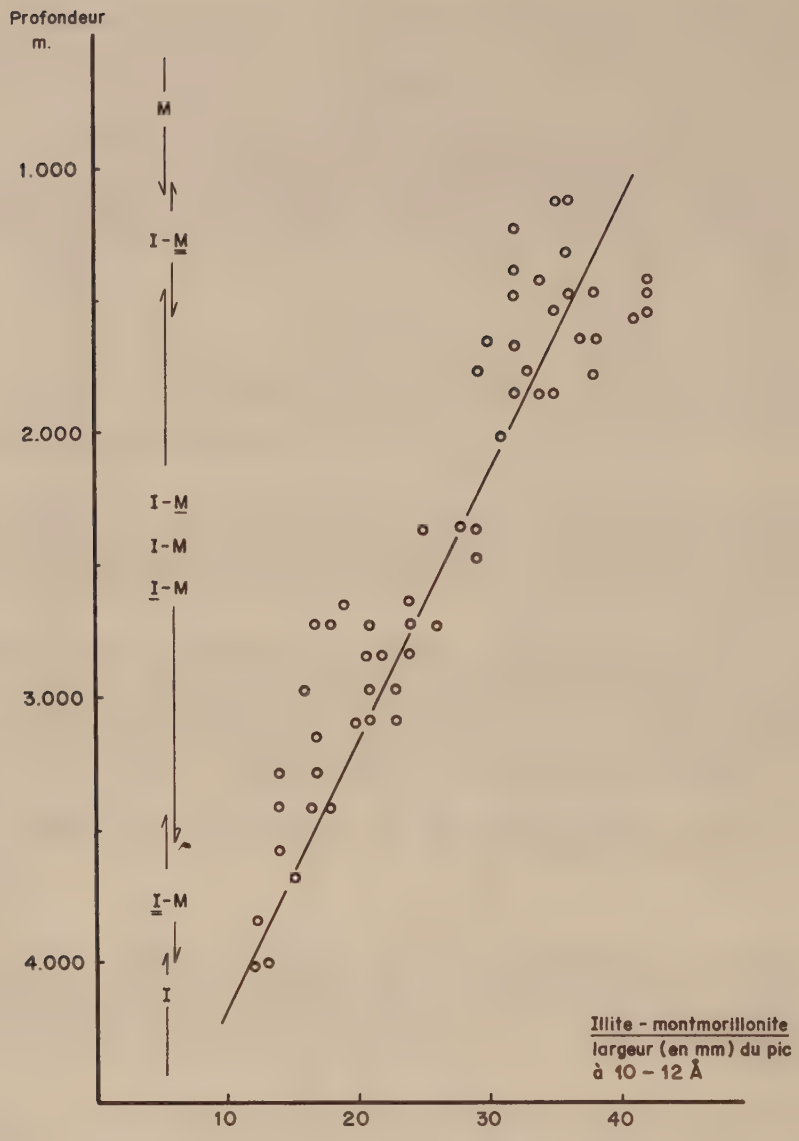


Fig. 15 - Forages de Logbaba. Variation du complexe interstratifié illite-montmorillonite avec l'enfouissement.

Un diffractogramme de poudre sur la fraction inférieure à 50 µ a confirmé la présence de dickite dont toutes les raies sont identifiables. Elle est associée à la kaolinite, l'albite et le quartz (fig. 16).

7 - Microscopie électronique

Un examen systématique au microscope électronique de la fraction inférieure à 2µ a été pratiqué dans le but de rechercher d'éventuelles variations morphologiques en relation avec la séquence montmorillonite ⟶ interstratifiés ⟶ illite. Nous avons utilisé la méthode et l'appareillage décrits p. 49.

L'aspect des minéraux argileux est en fait très uniforme du haut jusqu'en bas de la série. Il s'agit de petits cristaux de 0,2 à 0,5 µ, à contours imprécis, associés en flocons informes. Ils se distinguent fort bien des particules de mica détritique, atteignant toujours les 2µ, à bords nets et aux moirés caractéristiques. Aucune agradation morphologique n'est décelable. L'aspect moyen

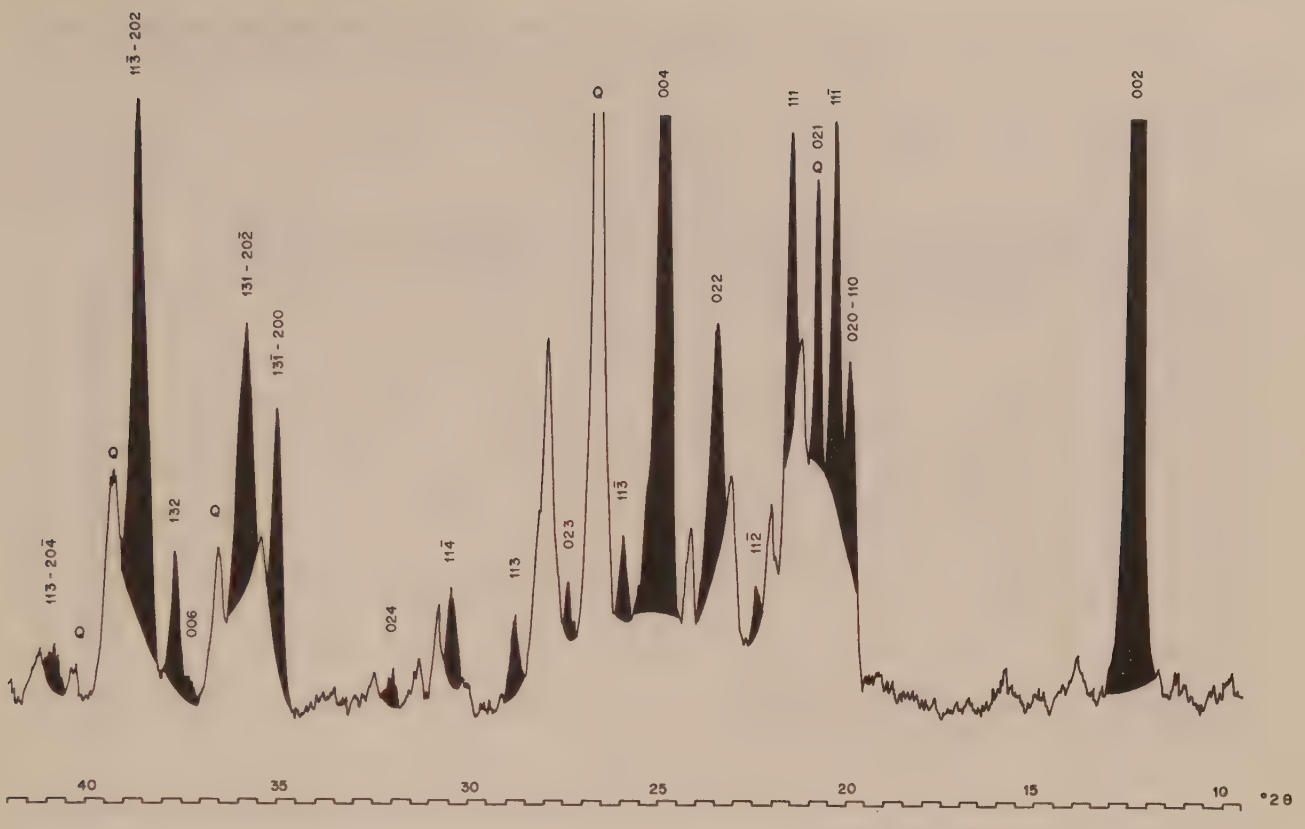


Fig. 16 - Forages de Logbaba. Diffractogrammes de poudre de la dickite des grès (échantillon LA 103, C 30). Broyage manuel à sec. Fraction <63µ. Les pics de la dickite sont en noir. Les autres pics appartiennent à la kaolinite, à l'albite et au quartz (Q).

est trop commun pour qu'il soit intéressant de le présenter ici : c'est celui des montmorillonites, tel qu'il est répandu dans les atlas de microscopie.

8 - Diagenèse expérimentale (G. SABATIER, 1964, résultats inédits)

Des expériences ont été réalisées au cours de l'année 1964 par M. SABATIER au Laboratoire de Minéralogie de la Faculté des Sciences de Paris. Elles avaient pour but de réaliser expérimentalement les transformations minéralogiques naturelles subies par les minéraux argileux à la base de la série de Logbaba.

Les essais ont porté sur les deux échantillons :

LA 103 n° 1	1151,20 m de profondeur	à	montmorillonite	80 %
			kaolinite	20 %
LA 101 n° 21	1809,50 m de profondeur	à	illite-montmorillonite	50 %
			chlorite-vermiculite	20 %
			kaolinite	30 %

On a réalisé deux séries d'essais, dans l'eau distillée d'abord, dans de l'eau de mer artificielle ensuite. Cette dernière avait la composition suivante :

NaCl	27,37 g
KCl	0,60 g
$CaSO_4$	1,32 g
$MgSO_4$	2,24 g
$MgCl_2$	3,36 g
$Ca(HCO_3)_2$	0,10 g pour 1 litre de solution.

2 g d'échantillon broyé sec ont été mis en présence de 20 cm d'eau distillée ou de la solution ci-dessus pendant 8 jours, à des températures de 200 et 400°C et à des pressions de 15 et 325 bars.

Les résultats sont résumés dans le tableau suivant :

Tableau VII

LOGBABA. Essais de diagenèse expérimentale réalisés au Laboratoire de Minéralogie de la Faculté des Sciences de Paris (G. SABATIER)

Echantillon	Traitement de 8 jours		Minéraux des argiles en %					Autres minéraux
			M	I-M	I	CV	K	
LA 101-21	200°C 15 bars	H_2O eau de mer	 80	60	10 tr.		30 20	Cancrinite
	400°C 325 bars	H_2O eau de mer		30 40	40 20	30 40		Cancrinite "
LA 103-1	200°C 15 bars	H_2O eau de mer	90 60		tr. 10		10 30	" "
	400°C 325 bars	H_2O eau de mer		90 90	tr. 10	10 tr.		" "

L'examen du tableau VII et la comparaison avec la composition initiale des argiles de départ permet de tirer les conclusions suivantes.

1/ A 200°C, LA 103-1 subit une légère illitisation par l'eau de mer.

LA 101-21 voit tout au contraire la montmorillonite se développer aux dépens de l'interstratifié I-M dans le même milieu marin.

La kaolinite est stable

2/ A 400°C, s'observent en eau distillée aussi bien qu'en eau de mer :

- la disparition de la kaolinite,
- la disparition de la montmorillonite,
- le développement d'une chlorite instable au chauffage,
- le développement soit d'illite (LA 103-1),
  soit d'illite-montmorillonite (LA 103-1).

Il apparait dans presque tous les cas un minéral très bien cristallisé dont les raies de diffraction sont celles de la cancrinite, feldspathoïde sodique hexagonal.

Les transformations ainsi obtenues à la température de 400°C sont très proches de celles que la nature a réalisées par diagenèse d'enfouissement à température plus faible mais sur une durée sans commune mesure avec celle des expériences de laboratoire. On compense donc par une élévation de température ce qu'on perd sur le temps de réaction. On verra se réaliser une compensation du même genre dans les essais de maturation expérimentale de la matière organique (voir p. 80).

Notons enfin qu'à la température de 400°C, la composition chimique du milieu réactionnel (eau distillée ou eau de mer) ne joue pratiquement aucun rôle, contrairement à ce qu'on aurait pu attendre.

VI - LA CHIMIE MINERALE

1 - Composition chimique de la roche totale

24 échantillons ont été analysés (Tableau VIII). Ils représentent un faciès très constant, celui des argilites silteuses plus ou moins micacées. Deux échantillons sont légèrement calcaires, aux profondeurs de 911 m et 3702 m.

Tableau VIII

LOGBABA. Analyses chimiques de roches totales (faciès argilite silteuse)

Profond. m	S_iO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	Perte au feu	Somme
778,5	46,2	19,8	1,39	0,71	8,75	0,038	1,78	1,42	2,00	16,7	98,82
911	41,1	16,7	1,44	7,83	8,96	0,009	1,13	1,37	1,57	15,3	95,44
1151,2	50,7	21,4	1,38	0,85	7,83	0,030	1,19	1,78	1,85	14,8	99,83
1254	44,7	21,9	1,31	0,42	9,0	0,037	0,95	1,48	1,72	17,1	98,60
350	47,6	23,1	1,31	1,10	5,92	0,017	1,12	1,36	1,64	15,5	98,70
1502,5	48,4	23,6	1,01	1,43	4,5	0,015	1,28	1,62	1,57	13,4	96,79
1667	50,6	20,9	1,85	0,81	7,98	0,019	1,17	1,93	2,10	14,2	101,53
1786	50,2	21,2	1,62	0,83	7,62	0,031	1,37	2,14	1,88	12,4	99,32
1878,4	52,6	20,3	1,12	0,83	5,62	0,035	1,17	2,00	1,73	9,3	94,53
2067,6	48,2	20,4	1,23	1,00	6,67	0,015	1,11	1,82	1,91	16,6	98,93
2278,7	52,5	20,6	1,81	0,44	7,88	0,014	1,19	2,05	2,35	11,5	100,30
2377	59,5	18,7	1,39	0,74	5,76	0,015	1,20	3,21	2,51	7,8	100,82
2488,5	55,6	17,9	1,28	0,45	5,07	0,014	1,17	2,82	2,35	9,3	95,97
2644	46,0	21,0	1,66	0,42	8,23	0,069	0,88	1,84	1,97	16,9	98,91
2746	52,9	18,6	2,12	1,13	8,71	0,031	1,09	2,52	2,44	9,5	99,06
2855,7	52,1	19,1	1,93	0,76	8,38	0,031	1,06	2,08	2,77	11,0	99,65
2978,8	52,3	17,2	2,08	2,13	9,35	0,045	1,12	2,56	2,35	9,3	98,41
3095,7	51,5	18,5	1,53	1,46	7,41	0,017	1,05	1,94	2,74	11,8	97,98
3162	52,5	19,5	1,82	0,35	8,95	0,016	1,08	2,00	2,46	11,4	100,06
3293	54,0	18,1	2,06	0,54	8,33	0,017	0,94	1,82	2,25	9,4	97,47
3423	54,5	17,4	2,75	1,52	8,54	0,029	0,93	1,92	2,42	9,2	99,24
3586	51,7	17,5	2,39	2,33	8,45	0,031	0,95	2,07	2,85	12,6	100,82
3702	43,1	14,6	3,47	9,55	9,55	0,014	0,77	1,36	2,35	15,5	100,21
3900	51,8	18,95	2,22	2,39	8,04	0,045	1,13	1,93	2,66	10,7	99,89

Certaines analyses présentent une somme des oxydes largement inférieure à 100. On a pu prouver que cela était dû à la présence de sulfates (gypse ou anhydrite) repérés dans l'examen en lames minces. L'anhydrite ne se décomposant pas à 1000°C, SO_3 est indosé.

La composition chimique des roches totales appelle les commentaires suivants :

- Le caractère uniforme de ces analyses confirme la monotonie de faciès indiquée par l'examen pétrographique. Le rapport quartz/argiles est lui-même assez constant puisque la teneur en SiO_2 ne varie que de 41 à 59 %.

Le calcium varie discrètement selon la teneur en calcite ; le manganèse et le titane ont une fluctuation très faible, de caractère aléatoire.

- Le fer est abondant ; l'examen pétrographique permet de penser qu'il est fixé partiellement sous forme de pyrite.

- Le magnésium est le seul élément dont la variation soit significative le long de la série (fig. 17). L'enrichissement en magnésium qui se marque vers la base correspond-il à l'agradation de la chlorite, telle qu'on l'a observée, ou bien traduit-il seulement un enrichissement en magnésium des solutions intertitielles ? Les analyses qui suivent (tableaux IX et X) ne permettent pas de s'en faire une idée précise. Les conditions dans lesquelles sont identifiés les ions solubles sont ici trop précaires.

2 - Composition chimique de la fraction fine

La fraction inférieure à 2 µ a été décarbonatée et analysée (tableau IX)

Si la composition chimique varie de façon faible et aléatoire pour certains constituants (Si, Al, Ca, Fe, Mn, Ti, Na), il n'en est pas ainsi pour Mg, K et la perte au feu. L'augmentation du magnésium est ici très peu marquée mais elle suit assez bien la teneur en chlorite, le chiffre le plus fort étant celui de la base du forage. Les valeurs de K_2O et de la perte au feu ont été reportées sur la figure 10 en tant que paramètres importants des transformations diagénétiques.

L'enseignement à tirer de ces analyses est le suivant :

1/ L'augmentation de la teneur en magnésium traduit l'agradation de la chlorite ;

2/ L'augmentation de la teneur en potassium traduit l'agradation de l'illite ;

3/ La diminution de la perte au feu traduit la disparition progressive des interfoliaires hydratés de type montmorillonite.

Ainsi donc se trouve confirmé par l'analyse chimique le schéma des transformations minéralogiques.

3 - La capacité d'échange cationique des argiles

Il était tentant de rechercher une nouvelle confirmation de la fermeture progressive des illites-montmorillonites en mesurant leur capacité d'échange de cations.

Les mesures, faites au Centre Recherches de Pédologie de Nancy grâce à l'obligeance de M. HETIER, ont été menées sur la roche totale dans le but de doser, outre les cations échangeables, tous les cations solubles de la roche, et d'approcher ainsi la composition des solutions interstitielles (Tableau X).

La capacité d'échange totale de la roche diminue fortement avec l'enfouissement. Etant donné que la teneur en argile de la roche totale ne varie pas de plus de 10 %, on peut affirmer que ce sont les minéraux argileux eux-mêmes qui voient leur capacité d'échange diminuer.

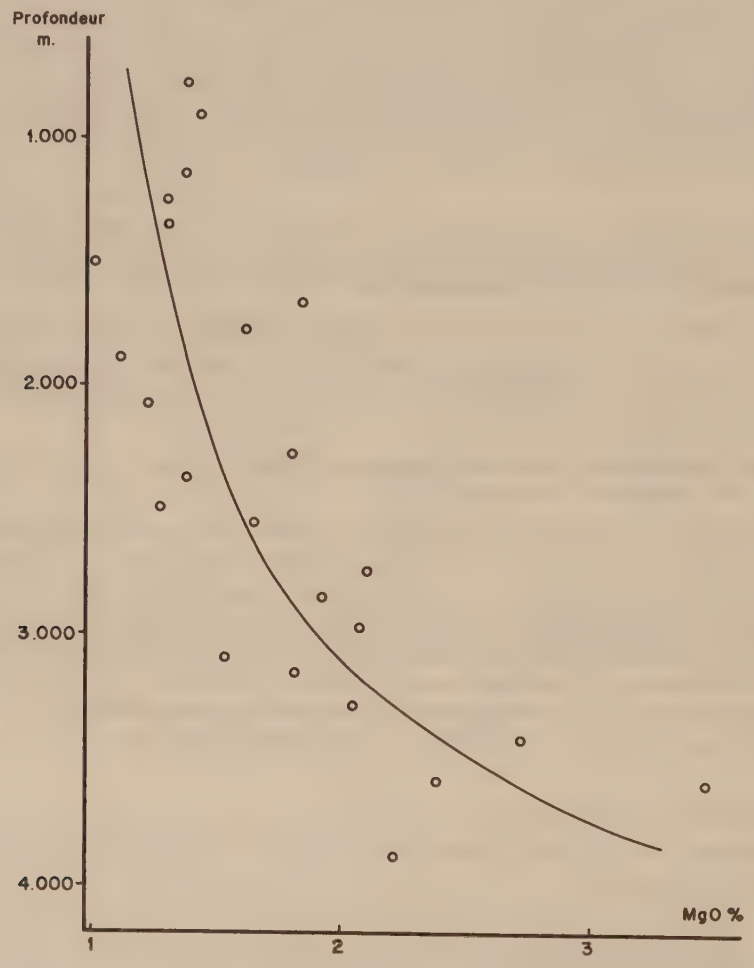


Fig. 17 - Forages de Logbaba. Variation de la teneur en magnésium de la roche totale.

Tableau IX

LOGBABA. Composition chimique de la fraction inférieure à 2μ décarbonatée

Prof. m	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F. 1000°	Somme	Perte à 115°
1350	39,2	21,0	1,2	0,8	5,6	0,026	0,95	0,15	1,14	-	101,44	-
1502	43,4	29,4	1,3	0,6	7,0	0,034	1,81	0,32	1,69	13,60	99,10	2,48
1667	45,7	23,9	2,0	1,0	10,5	0,051	1,59	0,42	2,48	11,28	98,85	4,05
1786	44,2	26,4	1,7	0,9	8,6	0,038	2,16	0,33	2,65	11,65	98,54	3,96
2068	43,5	23,2	1,3	1,0	9,0	0,025	1,33	0,82	2,40	15,05	97,62	3,89
2279	44,7	24,6	1,7	0,8	8,8	0,025	1,36	0,63	2,95	11,47	97,00	4,74
2377	47,6	23,7	2,0	0,9	8,3	0,029	1,32	0,76	3,79	10,76	99,12	3,59
2746	49,0	25,0	2,3	0,7	7,0	0,033	1,68	0,50	4,16	8,91	99,27	3,69
2856	48,5	27,7	1,5	1,1	4,0	0,026	1,34	0,38	4,52	8,02	96,98	9,70
3162	45,1	22,4	1,5	0,9	10,5	0,025	1,22	1,13	3,18	11,94	97,81	4,13
3900	49,2	25,0	1,7	0,8	4,5	0,023	1,58	0,71	4,24	10,92	98,62	7,26
4019	49,4	24,9	2,7	0,7	6,1	0,033	1,83	0,23	6,23	6,97	99,21	2,45

Tableau X

LOGBABA. Mesure des cations solubles sur des échantillons de roche totale

Profondeur m	K^+	Na^+	Ca^{+2}	Mg^{+2}	S	T (roche totale)	T' (argile)	interstr. cap. gonfl. %	S-T (solutions)
911	2,5	1,7	22	4,4	30,6	12,5	17,8	100	18,1
1151,2	1,3	3,9	14	6,1	25,3	25	35,6	100	0,3
1350	1,4	3,7	28	4,3	37,4	21,5	30,7	90	15,9
2377	1,1	2,0	21	5,9	30,0	13	18,6	30	17,0
2978,8	1,0	1,9	23	6,6	32,5	10,5	15,0	50	22,0
3162	0,9	2,0	13	11,5	27,4	15,5	22,2	50	11,9
3423	1,1	1,9	31	7,5	41,5	12	17,1	30	29,5
3702	1,4	1,4	35	3,2	41,0	7	10	10	34,0
4018,5	1,6	1,4	33	2,5	38,5	7	10	0	31,5

Chiffres en milliéquivalents pour 100 g de roche.
S = somme des cations solubles et échangeables (Na^+, K^+, Ca^{+2}, Mg^{+2})
T = capacité d'échange cationique totale de la roche totale.
T' = capacité d'échange cationique totale de la fraction argileuse.
S-T = somme des cations solubles en meq/100 g de roche totale, proportionnelle à la concentration des solutions interstitielles.

On a estimé à 70 % la teneur moyenne en argile des échantillons considérés, ce qui permet le calcul de la capacité d'échange de la fraction argileuse elle-même (fig. 18). Il faut ensuite admettre que ce sont les minéraux gonflants, montmorillonites et illites-montmorillonites qui sont essentiellement responsables de ces échanges cationiques, micas, chlorites et kaolinites ayant toujours une faible capacité.

On peut alors mettre en évidence une corrélation entre capacité d'échange et capacité de gonflement ainsi qu'on se l'était proposé au départ (fig. 19). Le point 911 m est singulier. Sa position s'explique si l'on observe (fig. 10) qu'une assez forte proportion de mica détritique ($<2\mu$) apparait à cette profondeur, diminuant d'autant la capacité d'échange de la fraction argileuse. Il est intéressant de noter que la droite de corrélation obtenue ici n'est pas éloignée de celle établie par HOWER et MOWATT (1966) dans des conditions expérimentales beaucoup plus précises (mesure de C.E.C. sur l'argile pure, évaluation systématique sur diagrammes RX du degré d'interstratification).

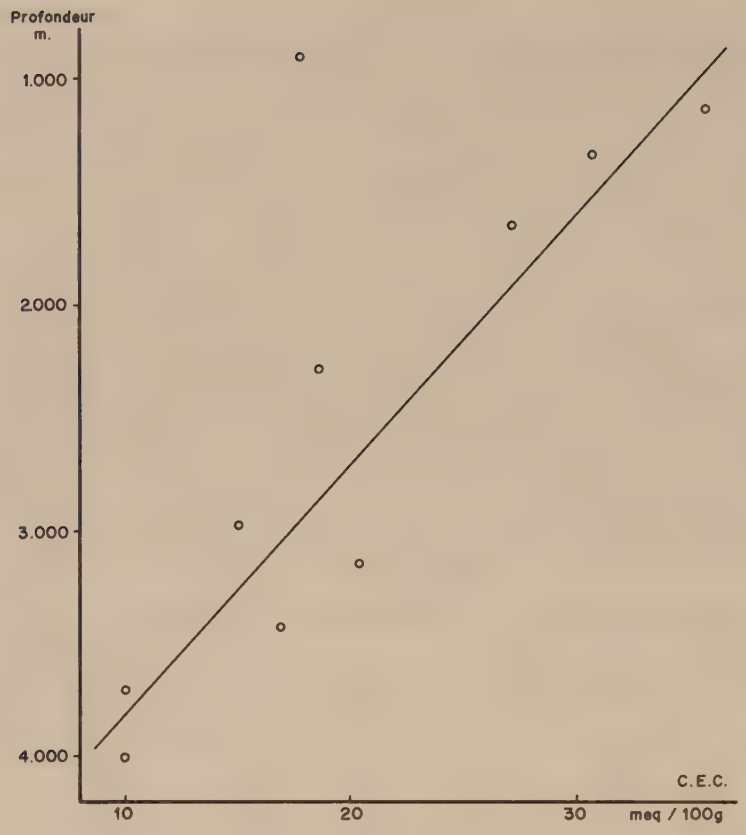


Fig. 18 - Forages de Logbaba. Capacité d'échange cationique (C.E.C.) de la fraction argileuse.

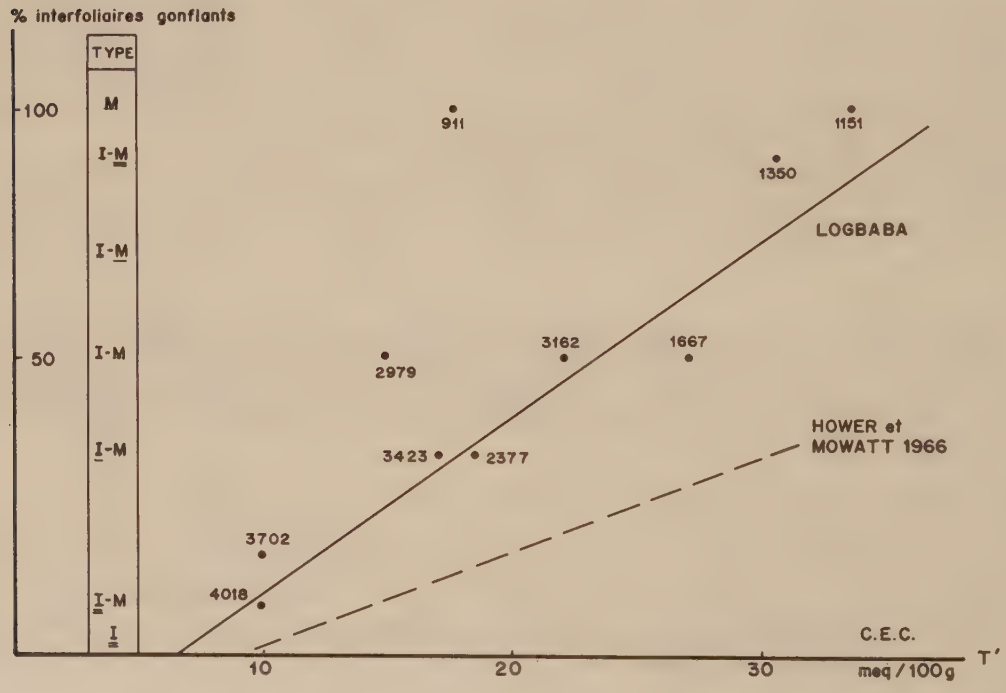


Fig. 19 - Forages de Logbaba. Relation entre capacité de gonflement et capacité d'échange cationique (C.E.C.) dans la série des interstratifiés illite-montmorillonite.

En fin de compte, l'intérêt de ces mesures peut se résumer en trois propositions :

- la diagenèse d'enfouissement provoque une disparition progressive des interfoliaires gonflants ;

- elle provoque également une réduction progressive de la capacité d'échange ;

- ces deux valeurs sont liées corrélativement de sorte que la mesure de l'une permettra de connaître l'autre lorsque des abaques sûres auront été réalisées.

- il est enfin très probable que le coefficient de corrélation dépend du contexte diagénétique (lithologie, solutions, gradients physiques et chimiques, etc...).

4 - La composition chimique des solutions interstitielles

Le pH a été mesuré sur la roche totale broyée et mise en suspension (5 g de roche pour 50 cc d'eau distillée). Les valeurs groupées ci-dessous (tableau XI) confirment par leur basicité le caractère marin franc de la sédimentation. Quelques pH acides sont sans doute à rapporter à des niveaux de lessivage postsédimentaire créant localement des conditions acides : ainsi les horizons gréseux à dickite.

Tableau XI

LOGBABA. Mesures de pH sur roches totales

Profondeur de l'échantillon m	pH	Profondeur de l'échantillon m	pH	Profondeur de l'échantillon m	pH
778,5	7,80	1786	8,06	2746	7,90
911	8,10	1793,5	8,18	2854	7,86
913,5	8,08	1809,5	8,42	2855,7	7,58
915	8,10	1878,4	7,90	2977,8	7,90
1204	4,40	1884,5	8,18	3094,5	7,50
1254	7,10	1885	7,68	3095,7	7,76
1350	8,10	1981,5	7,90	3162	7,25
1410,8	8,06	2039	7,80	3293	7,03
1441,5	8,08	2040,6	7,30	3293,5	7,10
1495	8,05	2061,5	8,08	3423	7,78
1497	7,70	2067,6	4,77	3425	7,75
1502	8,10	2278,7	5,55	3586	7,58
1502,5	7,95	2371	7,00	3587	5,50
1564,5	8,00	2377	4,22	3702	8,05
1598	7,67	2488,5	6,00	3702,5	7,60
1665	8,00	2489,2	8,10	3900	7,88
1667	5,96	2644	5,12	3900	8,10
1688	8,05	2655	7,72	3900	8,32
1689,5	7,95	2741,5	8,08	4017,5	7,95
1785,5	8,30	2742	7,80		

Les mesures effectuées (tableau X) permettent d'avoir une idée de la composition et de la concentration des solutions interstitielles. Les chiffres S-T expriment, en milliéquivalents pour 100 g de roche, le total des cations solubles à pH 7, non compris ceux qui peuvent entrer dans les interfoliaires argileux. Ces chiffres sont fonction de la concentration des solutions interstitielles. Pour calculer cette dernière, il faudrait utiliser une méthode comme celle de LONG et NEGLIA (1968), rapportant les teneurs en ions solubles au volume des vides, c'est-à-dire à la porosité de chaque échantillon. Les chiffres S-T du tableau se rapportent à des volumes de solution de plus en plus petits vers le bas de la série puisque la porosité des échantillons diminue avec la profondeur. Or ces chiffres sont croissants. On peut donc conclure a fortiori que la concentration des solutions interstitielles augmentait fortement vers la base de la série.

C'est un résultat logique, étant donné

- que les solubilités augmentent en général avec la température et la pression,

- que l'expulsion de l'eau sous l'effet de la compaction s'accompagne d'une filtration osmotique par les argiles qui retiennent certains ions préférentiellement (WHITE, 1965).

Dans ces conditions il faut considérer la pression ionique des solutions interstitielles comme un des facteurs de l'agradation diagénétique, aux côtés de la température et de la pression.

5 - Géochimie isotopique

On peut regretter qu'aucun dosage isotopique ne vienne préciser l'âge des recristallisations diagenétiques de la série de Logbaba. La teneur en potassium des argiles les plus profondes est suffisante pour espérer une datation correcte par la méthode potassium-argon. Malheureusement, à l'époque où ces échantillons ont été mis à l'étude, cette méthode n'était pas mise en oeuvre à Strasbourg où l'on ne disposait que de la méthode rubidium-strontium.

Un test a été pratiqué sur la carotte 3 du forage LA 104, à 2854 m de profondeur. Les teneurs étaient :

teneur en rubidium : 120 ppm.
teneur en strontium : 240 ppm.
$^{87}Sr/^{86}Sr$ = 0,711 (0,708 pour le strontium commun).

Ces chiffres ne permettent aucune mesure d'âge, ainsi qu'on pouvait s'y attendre. Dans des roches du Crétacé supérieur les teneurs en strontium radiogénique sont encore trop faibles.

Il faut espérer que des déterminations au potassium-argon permettront de dater la recristallisation des argiles illitiques. Elles réservent peut-être des surprises. L'étude du forage de Pierrefeu (voir plus loin) a montré en effet que l'agradation des argiles en profondeur était un phénomène sans doute assez lent puisqu'il n'avait pu se manifester pleinement de l'Oligocène jusqu'à nos jours. Ainsi, les recristallisations de Logbaba se sont-elles achevées à une époque peut-être assez récente du Tertiaire ? S'il en est ainsi, on serait curieux de savoir si les âges mesurés ne sont pas en rapport avec les manifestations volcaniques de l'axe Fernando Po - Mont Cameroun, qui, loin de toute émission volcanique, pourraient se traduire par une légère augmentation du flux thermique. Un tel espoir n'est pas illusoire quand on sait la susceptibilité des réseaux argileux aux moindres déséquilibres thermodynamiques, ainsi qu'un exemple récent vient encore de le prouver (BONHOMME et PRÉVÔT, 1968).

VII - LA MATIERE ORGANIQUE

La série de Logbaba, dont j'ai décrit la monotonie, présente une teneur en matière organique faible et constante (fig. 20). On peut penser que cette matière organique avait au moment de son dépôt une composition assez constante, elle aussi, étant donné que les conditions paléogéographiques ont peu varié pendant la période de sédimentation.

Il était alors possible d'espérer qu'une analyse détaillée des constituants organiques mettrait en évidence des transformations diagénétiques, tout comme l'avait fait l'étude des minéraux argileux. Le travail a été réalisé conjointement au Centre de Recherches de Pau (SNPA) par MM. BAJOR, CONNAN, KUBLER, KULBICKI et VAN DER WEIDE[1], et au Laboratoire de Chimie Organique de la Faculté des Sciences de Strasbourg (ALBRECHT et OURISSON, 1969; ALBRECHT 1969). L'intérêt des résultats obtenus pour la compréhension des phénomènes de diagenèse à Logbaba m'autorise à résumer les principales conclusions.

1/ Le carbone organique total représente 1 à 2 % de la roche totale (fig. 20). Il varie de façon quelconque. Cela veut dire que la sédimentation varie à petite échelle, d'une couche à l'autre comme l'exprime l'alternance des niveaux argileux et gréseux ; mais elle est constante à l'échelle de la formation tout entière, présentant toujours le même faciès moyen.

2/ Le "carbon ratio" ou rapport "carbone fixe/carbone fixe + carbone volatil à 900°C sous azote" varie de 0,1 à 0,7 du haut en bas de la série (fig. 21). Cela représente une maturation de la matière organique réalisant une "carbonisation" progressive.

---

(1) Je remercie la direction de la Société Nationale des Pétroles d'Aquitaine de m'avoir permis de faire état de ces résultats.

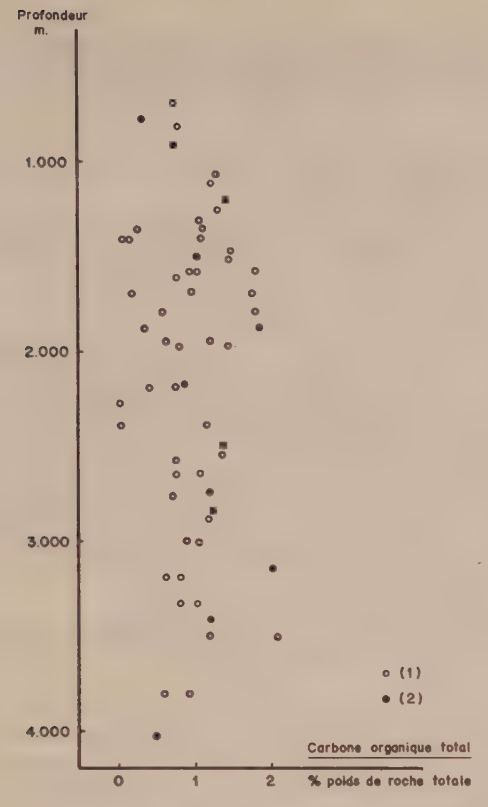


Fig. 20 - Forages de Logbaba. Teneur en carbone organique total. (1) KUBLER, KULBICKI, VAN DER WEIDE, inédit, (2) ALBRECHT et OURISSON (1969)

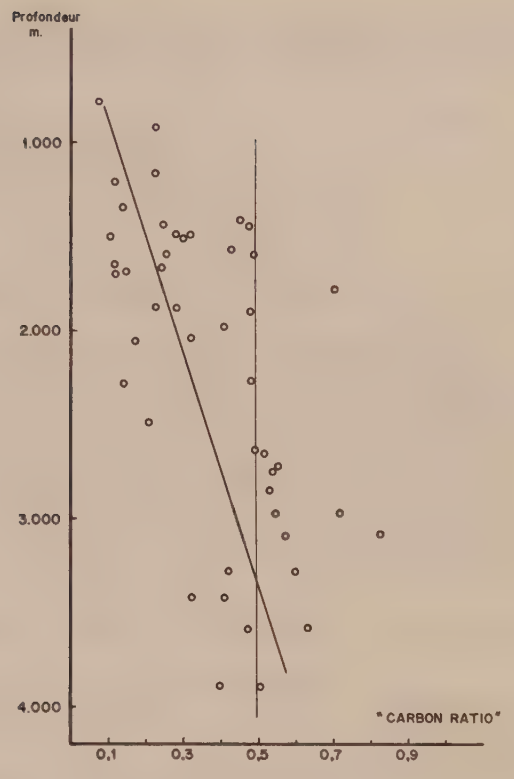


Fig. 21 - Forages de Logbaba. Augmentation du "carbon ratio" avec l'enfouissement.

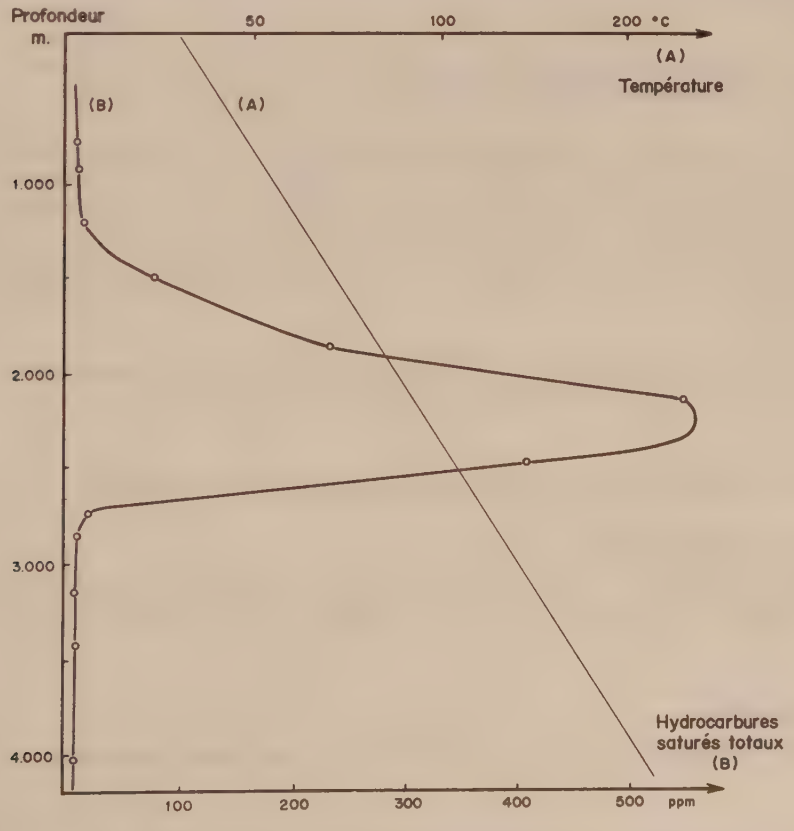


Fig. 22 - Forages de Logbaba. Répartition des hydrocarbures saturés (B) en fonction de la profondeur et de la température (A). D'après ALBRECHT et OURISSON (1969).

3/ La composition des hydrocarbures fait apparaître une variation importante du rapport aromatiques/saturés. Ce rapport n'a pu être mesuré que pour cinq échantillons (tableau XII).

Tableau XII

LOGBABA. Composition des hydrocarbures.
(KUBLER, KULBICKI, VAN DER WEIDE, inédit)

Profondeur	1150	1790	1880	2080	2490 m
arom./saturés	1,75	0,85	0,70	0,45	0,40

4/ L'évolution des hydrocarbures saturés ou alcanes, a été analysée en détail par ALBRECHT et OURISSON (1969). La teneur en alcanes totaux montre une répartition singulière (fig. 22). Si on maintient l'hypothèse d'une matière organique constante au départ, hypothèse qui sera justifiée plus loin, une telle courbe s'explique par les trois mécanismes suivants :

a - Genèse d'alcanes à partir d'une profondeur de 1300 m, c'est-à-dire une température de 70°C. Ce résultat s'inscrit entre ceux de PHILIPPI (1965) pour les bassins tertiaires de Californie (115°C), et de LOUIS et TISSOT (1967) pour le Toarcien du bassin de Paris (65°C). Il est intéressant de remarquer que les températures sont dans l'ordre stratigraphique inverse, comme si le facteur "temps" venait contrebalancer le facteur "température".

b - Concentration d'alcanes vers la profondeur de 2200 m. Le rapport alcanes/carbone organique total atteint 0,040, valeur correspondant à d'anciennes roches-mères.

c - Disparition des alcanes au-dessous de 2500 m. Il est difficile, dans l'état actuel des recherches, de faire la part des phénomènes de migration et de ceux de destruction par craquage qui pourraient être responsables de cette disparition. L'étude de la composition des alcanes montre vers le fond du forage une diminution des lourds au profit des légers, et une augmentation du méthane, donnant ainsi de la valeur à l'hypothèse du craquage.

5/ Le caractère marin de la série a été confirmé par la distribution des n alcanes autour de C_{17} sans prédominance impaire prononcée, ainsi que par la présence importante de pristane dans les isoprénoïdes.

6/ L'uniformité de la matière organique de départ peut être garantie par la prédominance dans toute la série des 4 isoprénoïdes C_{20} (phytane), C_{19} (pristane) C_{18} et C_{16}.

7/ Des essais de maturation thermique expérimentale ont été réussis par ALBRECHT (1969). Les hydrocarbures des couches supérieures (1200 m) chauffés à 240°C en tube scellé sous azote se sont transformés pour acquérir la distribution qu'on observe dans les couches plus profondes (2700 m). Notons, avec ALBRECHT, que la température nécessaire pour cette transformation est supérieure à toutes celles notées dans les transformations diagénétiques naturelles. Cela met en lumière le rôle important joué par le temps dans certaines réactions diagénétiques dont les vitesses sont très faibles.

8/ Un dernier facteur de diagenèse réside dans l'augmentation progressive du taux d'amino-acides non extractibles par HCl 6N (BAJOR et VAN DER WEIDE, 1967).

VIII - CONCLUSION PARTIELLE A L'ETUDE DES FORAGES DE LOGBABA

1- Nature de la série sédimentaire

Série du Crétacé supérieur, de plusieurs milliers de mètres d'épaisseur, à faciès détritique fin très constant (argilites silteuses noires), non exondée, non tectonisée, dépourvue d'intrusions magmatiques.

2 - Facteurs de diagenèse

Un enfouissement rapide a soumis la série à divers gradients physiques et chimiques :

- la température s'élève jusqu'à 160°C,
- la pression hydrostatique atteint 750 kg/cm^2,
- les solutions interstitielles se concentrent.

Ces conditions, rapidement atteintes au cours du Crétacé et du Paléocène, se sont exercées jusqu'à nos jours, c'est-à-dire pendant 70 millions d'années.

3 - Variations diagénétiques observées

- La porosité diminue avec la profondeur.

- Les micas détritiques se dégradent suivant des processus complexes, et évoluent vers la kaolinite ou la chlorite.

- Montmorillonite et kaolinite disparaissent successivement au-dessous de 1500 et 2000 m.

- Un édifice interstratifié irrégulier illite-montmorillonite se développe au dessous de 1200 m. Il varie en quantité, formant l'essentiel de la fraction argileuse dans la partie centrale de la série. Mais il varie surtout en qualité, se rapporchant peu à peu de l'illite à laquelle il passe insensiblement.

- Ces variations minéralogiques se traduisent dans la composition chimique des argiles :

  . la capacité d'échange cationique diminue avec l'enfouissement,
  . la perte au feu diminue également,
  . la teneur en potassium augmente au contraire.

- La dickite se développe dans les niveaux gréseux

- La chlorite voit augmenter sa stabilité au chauffage.

- Le "carbon ratio" passe de 0,2 à 0,6.

- Le rapport hydrocarbures aromatiques/hydrocarbures saturés passe de 1,75 à 0,40.

- Les hydrocarbures saturés subissent une genèse accompagnée d'un changement de distribution. Cette genèse est suivie très rapidement d'un craquage des chaînes longues.

CHAPITRE II

LE BASSIN DE FORT POLIGNAC (SAHARA)

C'est à la demande du Bureau de Recherches de Pétrole (BRP) que les séries paléozoïques du bassin de Polignac ont été mises à l'étude à Strasbourg. Il s'agissait de rechercher les variations latérales, à l'échelle d'un bassin, des gradients de diagenèse tels qu'on avait déjà pu les mettre en évidence, de façon ponctuelle, dans les bassins de Douala, de Tindouf et de Camargue (DUNOYER, 1964 et rapports inédits).

Je tiens à remercier ici encore le BRP pour la collaboration qu'il m'a offerte. Je veux remercier également N. CLAUER qui m'a apporté son assistance technique tout au long de cette étude.

I - LE CADRE GEOLOGIQUE DU BASSIN DE POLIGNAC (fig. 23 et 24)

Ce bassin a fonctionné en tant que tel durant le Paléozoïque. Ses limites sont constituées au sud par les puissantes séries cambro-ordoviciennes des Tassili n'Ajjer s'appuyant sur le bouclier précambrien du Hoggar. Le bassin est limité à l'est par le haut-fond de Tihemboka qui le sépare de la Libye, à l'ouest par le promontoire d'Amguid, au delà duquel s'étendent les bassins du Mouydir et de l'Ahnet.

Actuellement le bassin s'étend en profondeur entre les falaises gréseuses des Tassili au pied desquelles se trouve le fort Polignac et le plateau constitué par la hamada de Tinrhert (fig. 24). Les locutions "bassin de Polignac" et "bassin du Tinrhert" seront utilisés ici comme synonymes. Entre hamada et tassili s'étend un vaste périmètre où se développent des ergs.

La géologie du bassin de Polignac est connue essentiellement par les résultats de la recherche pétrolière : études géologiques, géophysiques, rapports de sondage, travaux de laboratoire, essais de synthèse etc... La quantité et la qualité des données dont on dispose ainsi est considérable. L'essentiel en est inédit. Il serait hors de propos de tenter ici une synthèse, même partielle, de tous ces résultats. Mais il ne serait pas convenable de ne pas citer les principaux travaux, ceux sur lesquels je me suis constamment appuyé, ceux auxquels je me référerai souvent dans la suite de l'exposé. Ce sont, par ordre chronologique :

MICHEL et al. (1959), C.R.E.P.S. (1963), YAPAUDJIAN (1964), JARDINE (1965), CHENNAUX et BENARAB (1966), DUNOYER de SEGONZAC et CLAUER (1966), ALPERN (1967), KUBLER et VAN DER WEIDE (1967), LAMBERT (1967), JARDINE et YAPAUDJIAN (1967).

L'histoire géologique du bassin se révèle à travers ces divers travaux.

Elle peut se résumer très brièvement de la façon suivante :

Le Cambro-ordovicien est surtout connu par ses affleurements dans le pays des Tassili. Les forages ne l'ont pas toujours traversé intégralement dans le bassin de Polignac. On sait que cet ensemble a été subdivisé en quatre unités principales. Nous renvoyons le lecteur au mémoire de FREULON (1964), aux notes de DEBYSER, CHARPAL et MERABET (1965), BEUF, BIJU-DUVAL, STEVAUX et KULBICKI (1966), à la brève synthèse collective présentée récemment (BEUF, BENNACEF, BIJU-DUVAL, CHARPAL, GARIEL et ROGNON, 1968), et surtout aux importants mémoires publiés depuis 1962 par l'Institut Français du Pétrole (DEBYSER, BEUF et al., 1962 à 1967).

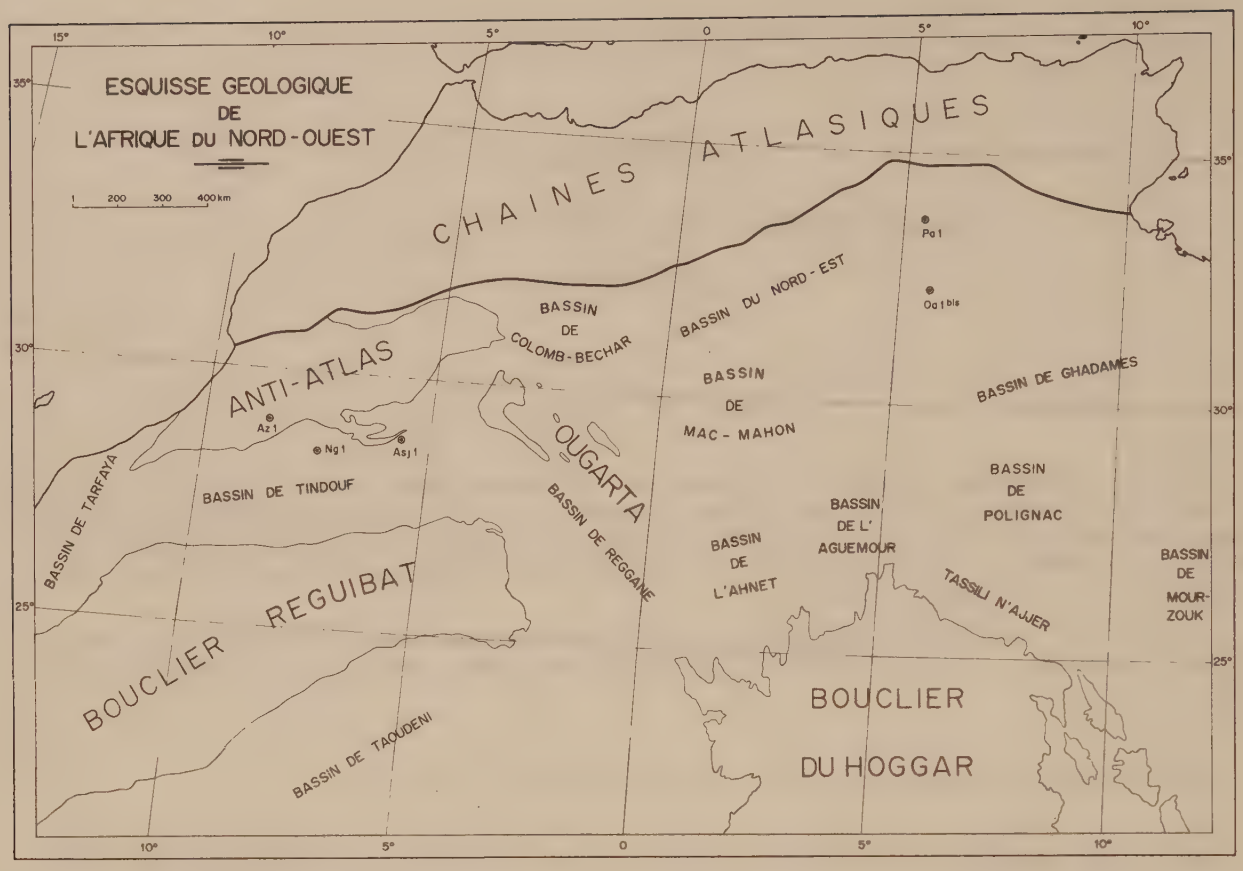


Fig. 23 - Situation géographique des principaux bassins sédimentaires au nord du Sahara.

Les isopaques du Cambro-ordovicien marquent un amincissement irrégulier du sud vers le nord, l'épaisseur totale variant entre 600 et 100 m.

Au Siluro-dévonien, le trait structural important du bassin est l'existence d'un haut-fond permanent à l'est, le Tihemboka, qui ne sera entièrement recouvert que par la transgression carbonifère. L'analyse stratigraphique fait apparaître deux provinces, l'une orientale, l'autre occidentale dont la limite approximative est représentée sur la figure 24. La province orientale présente une série réduite par rapport à celle de la province occidentale. Les corrélations proposées par les géologues pétroliers sont indiquées figure 25. L'évolution dans le temps peut alors s'envisager comme suit.

- Le Gothlandien argileux voit son épaisseur diminuer du sud au nord (500 m à Fort Polignac, 200 à 300 m sous le Tinrhert).

- La fin du Gothlandien est marquée par une régression. L'aire de sédimentation est située le plus souvent dans la zone occidentale du bassin (Zones M1, M2, A, B1)

- Le Dévonien débute par une sédimentation importante dans la province occidentale. (Zones B2, C1)

- La transgression dévonienne s'étend à tout le bassin. (Zone C3)

- L'aire de sédimentation bascule vers la province orientale. (Zones D1, D2, D3)

- Le Dévonien argileux (Zone E) se dépose sur l'ensemble du bassin. Les épaisseurs minimales se localisent d'une part sur le Tihemboka (100 m) d'autre part dans la partie centrale du Tinrhert (200 m). L'épaississement se fait vers le sud-ouest (bassin de l'erg Issaouane, voir Irarraren fig. 32).

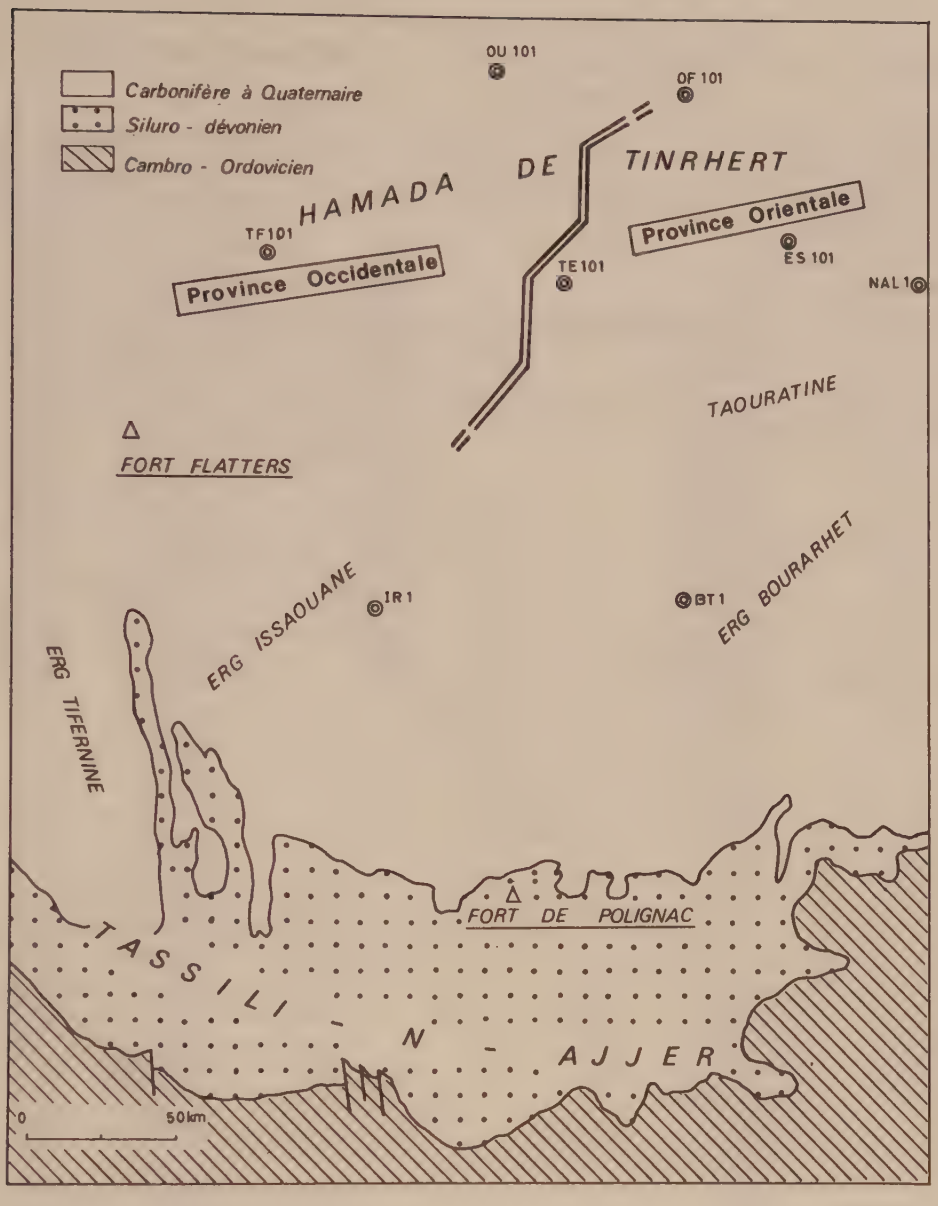


Fig. 24 - Bassin de Polignac. Situation des forages étudiés.

Quant au Carbonifère, les cartes d'isopaques font surtout apparaître les effets de l'érosion (hercynienne au nord, récente au sud). La variation totale de puissance due à cette érosion atteint 1400 m. Elle est certainement supérieure à celle due à la subsidence. Ce n'est que pour le Viséen que l'on a pu déterminer une zone de moindre subsidence s'étendant du Tihemboka à la partie centrale du Tinrhert. On peut citer, pour les bassins voisins de l'Ahnet et du Mouydir l'article de synthèse de FOLLOT (1952).

II - LES RESULTATS ANALYTIQUES DES ECHANTILLONS DE FORAGE

Les huit forages dont je présenterai maintenant l'étude détaillée permettent de réaliser trois coupes est-ouest à travers le bassin (fig. 24).

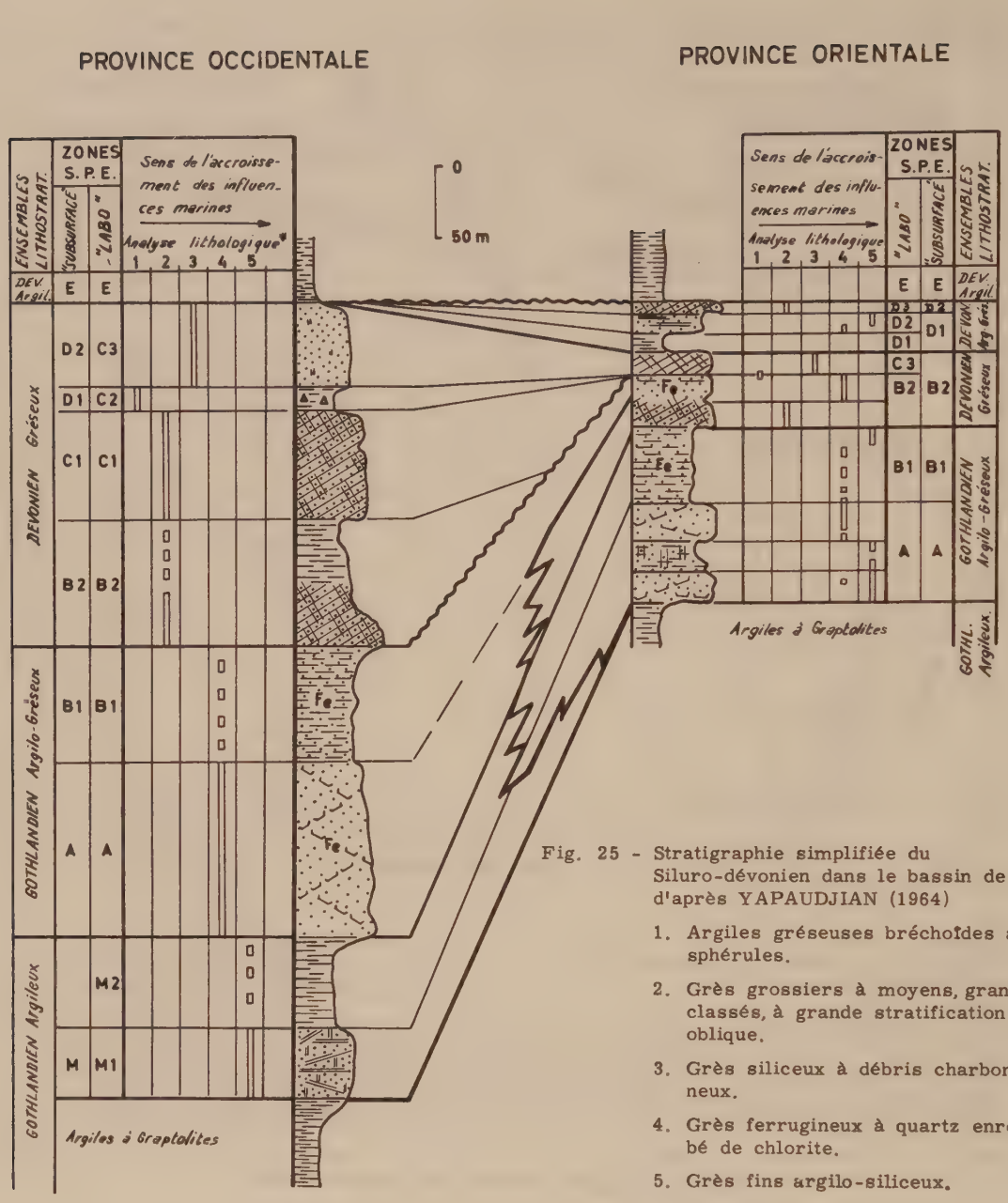


Fig. 25 - Stratigraphie simplifiée du Siluro-dévonien dans le bassin de Polignac. d'après YAPAUDJIAN (1964)

1. Argiles gréseuses bréchoïdes à sphérules.
2. Grès grossiers à moyens, granoclassés, à grande stratification oblique.
3. Grès siliceux à débris charbonneux.
4. Grès ferrugineux à quartz enrobé de chlorite.
5. Grès fins argilo-siliceux.

J'ai établi pour chacun d'eux une figure synthétique où sont rassemblés les résultats les plus significatifs. J'ai tenu compte, en plus de mes propres mesures, des données des rapports de fin de sondages ainsi que des travaux faits au CERCHAR et à la SNPA sur les mêmes échantillons dans le cadre d'un programme de recherches unique organisé et coordonné par l'ERAP.

1 - Le forage d'Oudoumé (fig. 26)

La coupe du Paléozoïque est complète entre les profondeurs de 1825 et 4050 m.

Les minéraux des argiles montrent des associations à peu près constantes. Il faut noter seulement l'abondance de la kaolinite au Gothlandien supérieur et au Dévonien, ainsi que le classique changement de faciès de l'Ordovicien où dominent l'illite et la chlorite.

Fig. 26 - Forage d'Oudoumé (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA). (2) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR.

L'illite voit sa cristallinité s'améliorer peu à peu, les différences étant surtout sensibles entre les termes extrêmes de la série.

La carbonisation de la matière organique est incertaine. Les données du "carbon ratio" et celles du pouvoir réflecteur des particules charbonneuses présentent bien la corrélation habituelle. Mais le "carbon ratio" chute brusquement dans les argiles du Gothlandien, passant de 0,6 à 0,2 ; le pouvoir réflecteur s'abaisse de 1,5 à 1 %. Un point singulier, à 3770 m de profondeur, offre un "carbon ratio" élevé de 0,7 que confirme un pouvoir réflecteur également élevé atteignant 2 %.

La teneur en bore est particulièrement faible (100 ppm en moyenne). Elle est étroitement liée à la teneur en illite, toutes deux augmentant graduellement du bas vers le haut.

En conclusion le forage d'Oudoumé, malgré la grande profondeur atteinte, ne montre que des traces bien faibles de diagenèse d'enfouissement : une légère recristallisation de l'illite, une carbonisation élevée en un point particulier seulement. Il est vrai que le degré géothermique actuel est assez faible (42 m) et que les changements sédimentologiques progressifs, dont témoignent les courbes du bore et de l'illite, ont pu masquer les effets discrets d'une diagenèse.

2 - Le forage d'Ouan Fidjidjéné (fig. 27)

Le Trias gréseux, le Carbonifère et le Dévonien ont été seuls échantillonnés. La minéralogie des argiles n'offre aucun caractère discriminatif. Tout au plus peut-on noter l'abondance particulière de chlorite dans le Trias et de kaolinite dans le Dévonien.

La cristallinité de l'illite est pratiquement stationnaire.

Le "carbon ratio" diminue légèrement, s'élevant localement jusqu'à 0,75, tandis que le pouvoir réflecteur des particules charbonneuses marque, lui aussi, un maximum jusqu'à 1,6 %.

Il s'agit d'une série dont la profondeur d'enfouissement est moyenne (1100 à 3200 m) et dont le degré géothermique est faible (46 m). Les effets de la diagenèse y sont imperceptibles. Plus précisément, une diagenèse d'enfouissement assez faible a affecté l'ensemble de la série, portant la cristallinité de l'illite à 10, le carbon ratio à 0,6 et le pouvoir réflecteur à 1 %. Aucun gradient de diagenèse ne se dessine le long de cette série dont l'épaisseur n'excède pas 2000 m.

3 - Le forage d'Ouine Eslak (fig. 28)

Dans ce forage qui traverse tout le Paléozoïque la minéralogie des argiles n'offre d'autre caractère que l'arrivée massive d'illite dans l'Ordovicien et une très légère diminution des interstratifiés gonflants du haut vers le bas.

La cristallinité de l'illite s'accroît sensiblement entre les valeurs 13 et 5 mm.

La carbonisation de la matière organique est effective et se traduit dans une augmentation irrégulière du pouvoir réflecteur et une progression très nette du "carbon ratio" qui passe de 0,35 à 0,77.

Ainsi donc, dans ce forage où l'enfouissement et le degré géothermique faible (41 m) sont pratiquement les mêmes que dans les deux forages précédents, se révèle une diagenèse discrète, mais régulièrement croissante vers le bas.

4 - Le forage de Nord Alrar (fig. 29)

Les conclusions qui précèdent peuvent s'appliquer à ce forage qui montre pratiquement les mêmes séries dans les mêmes conditions d'enfouissement et les mêmes conditions thermiques (degré géothermique : 40 m).

Il faut toutefois noter :

- que le pouvoir réflecteur s'y élève de façon plus graduelle ;

- que le "carbon ratic" y montre des variations désordonnées que, pour cette raison, nous n'avons pas cru devoir représenter sur la figure 29 ;

- que les teneurs en bore et en illite varient corrélativement, exprimant des variations de sédimentation. Ces changements seront à demêler soigneusement d'avec les modifications diagénétiques.

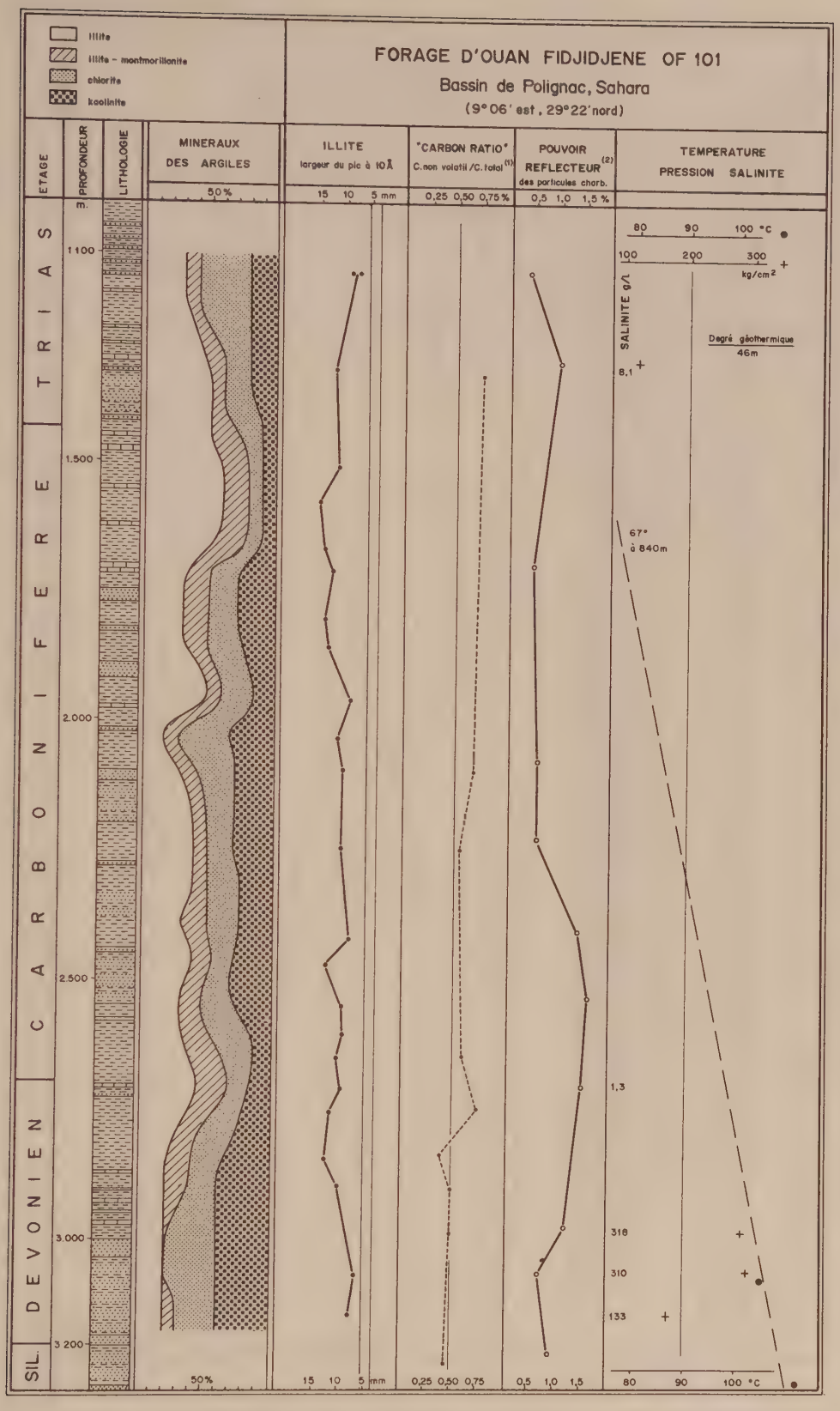


Fig. 27 - Forage d'Ouan Fidjidjéné (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA). (2) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR.

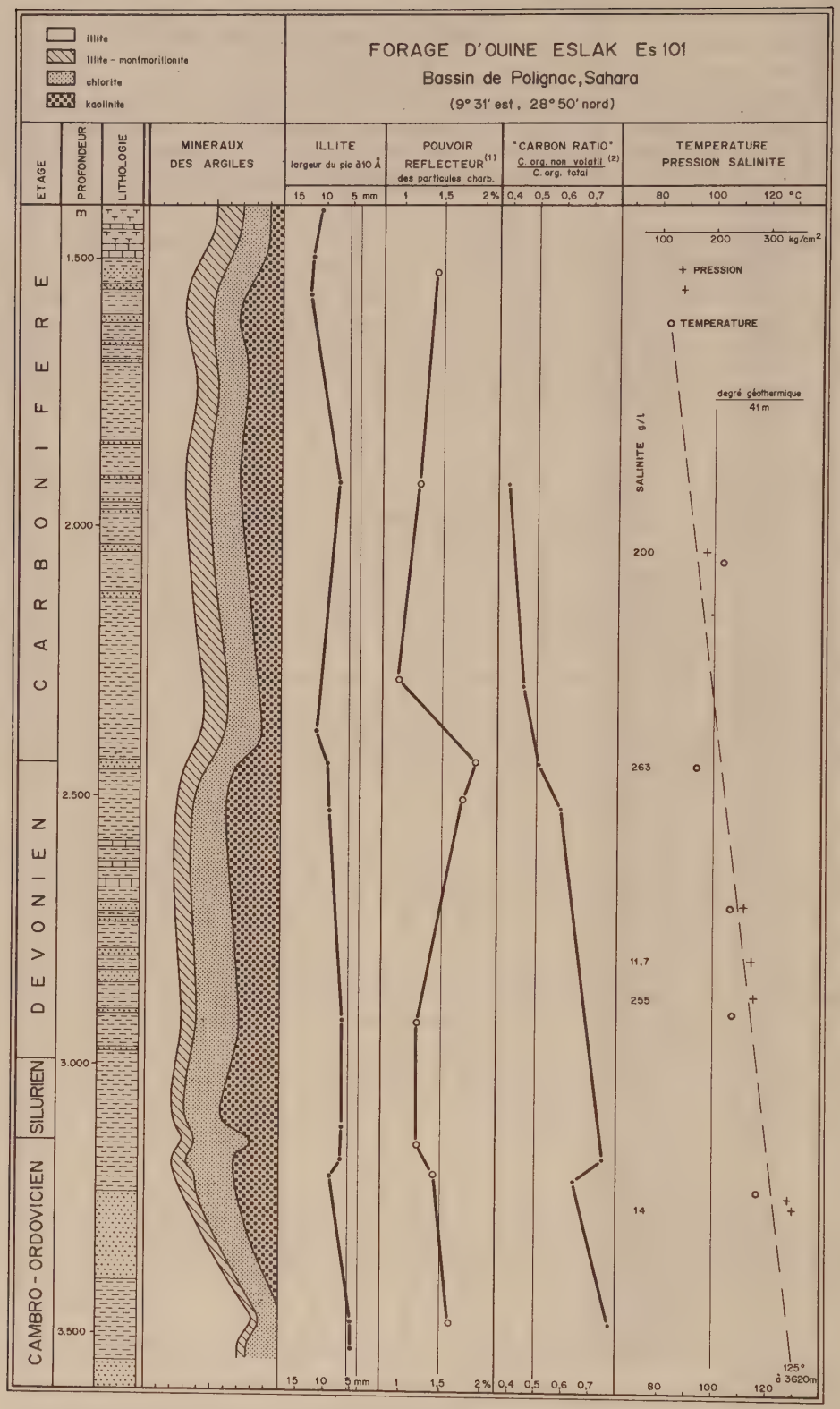


Fig. 28 - Forage d'Ouine Eslak (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR. (2) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA).

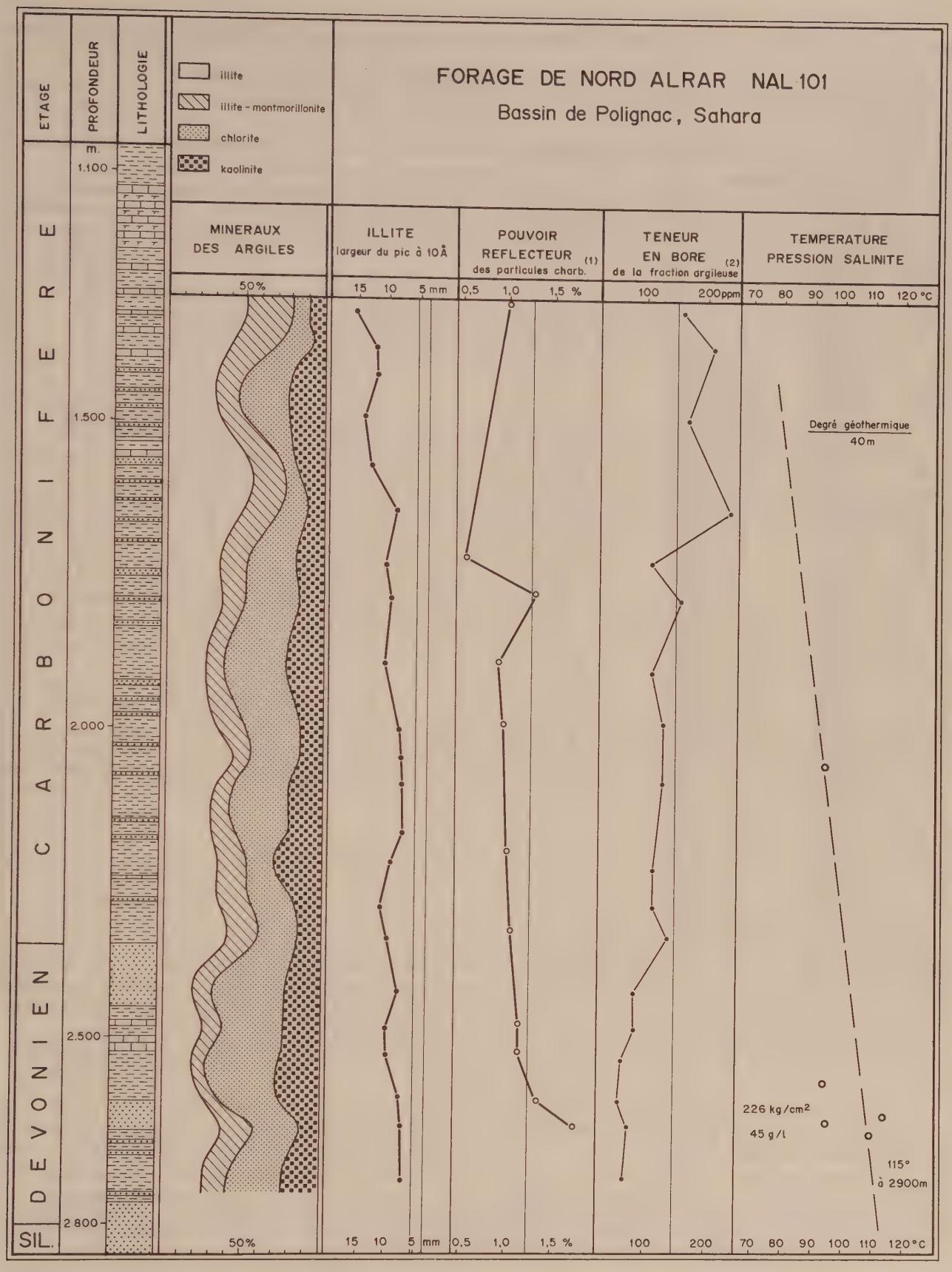


Fig. 29 - Forage de Nord Alrar (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR. (2) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA).

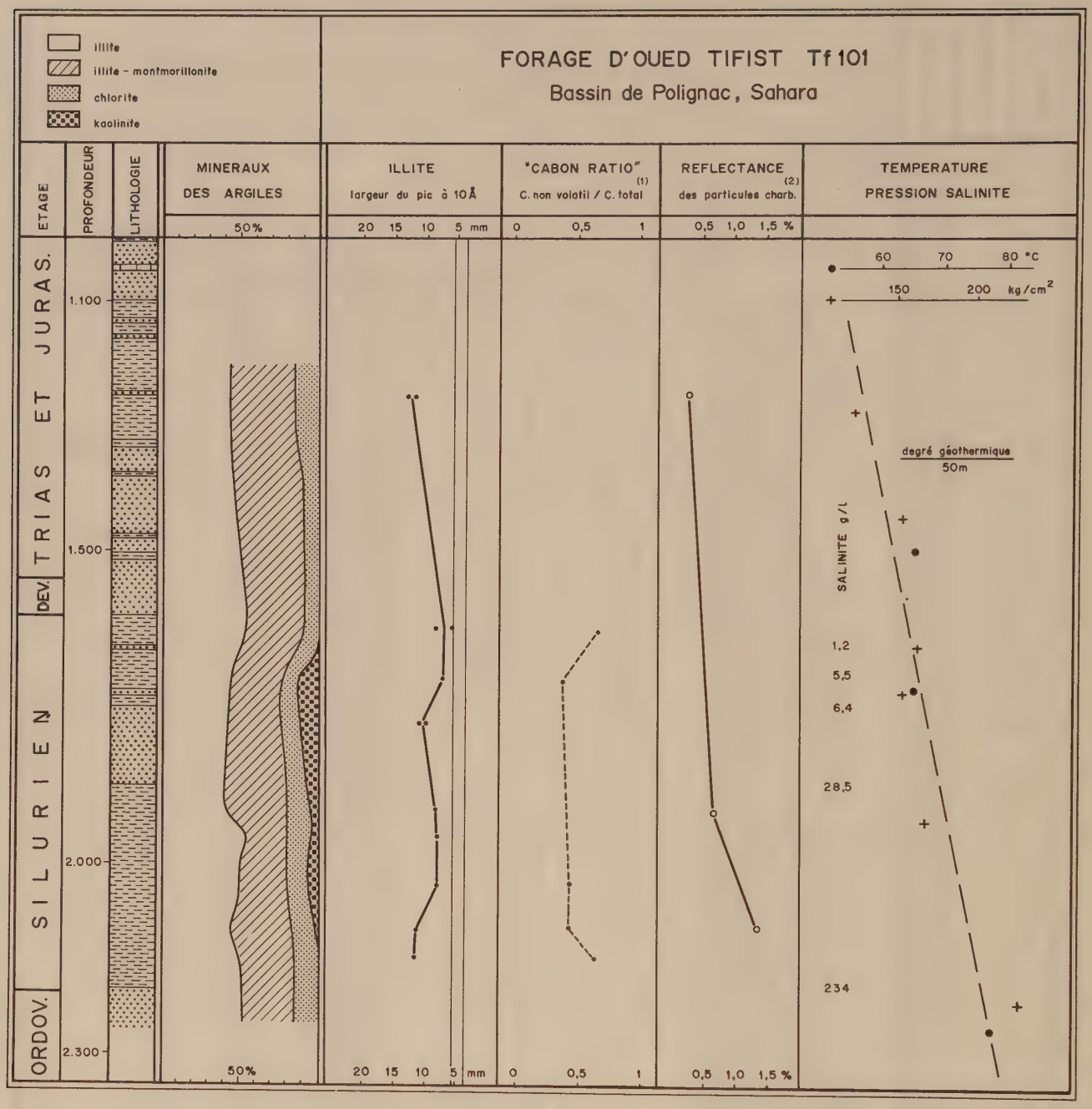


Fig. 30 - Forage de Tifist (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA). (2) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR.

5 - Le forage de Tifist (fig. 30)

Les érosions post-hercyniennes ont ici décapé le Paléozoïque jusqu'à la base du Dévonien. Le Silurien s'y montre particulièrement riche en illite. "Carbon ratio" et pouvoir réflecteur ont des valeurs moyennes. Aucun gradient diagénétique ne peut être mis en évidence. Le degré géothermique est le plus faible de tous ceux mentionnés ici : 50 m.

6 - Le forage de Tesselit (fig. 31)

Ce forage est situé non loin de la dorsale qui s'est développée au Dévonien moyen entre les deux provinces, occidentale et orientale, du bassin de Polignac. Le Dévonien y est d'ailleurs assez réduit (140 m).

La série traversée s'étend de l'Ordovicien au Mésozoïque. Sa profondeur maximale atteinte est actuellement de 110°C.

Les teneurs en bore croissent ici encore de l'Ordovicien au Carbonifère supérieur, mais sans liaison avec la teneur en illite dans la fraction argileuse.

Dans de telles conditions, trois paramètres ont révélé des variations graduelles en fonction de la profondeur :

- la cristallinité de l'illite va croissant ;
- la compaction des argiles se fait plus intense (la porosité passe de 10 à 4 %) ;
- la carbonification régresse, d'autant plus faible que la profondeur est plus forte (1,5 à 0,5 %). On reviendra sur cette anomalie (voir p. 102).

7 - Le forage d'Irarraren (fig. 32)

Avec les deux derniers forages nous abordons la partie méridionale du bassin de Polignac, où affleure le Carbonifère et où le Siluro-dévonien est relativement plus épais.

Le forage ne dépasse guère 2000 m de profondeur. Le degré géothermique est moyen (32 m). Comme dans le forage précédent, certaines agradations en relation avec la profondeur sont cependant lisibles :

- légère diminution des interstratifiés gonflants (35 à 20 %) ;
- amélioration de la cristallinité de l'illite (12 à 4 mm) ;
- diminution de la porosité (8 à 1 %).

Par ailleurs, le pouvoir réflecteur des particules charbonneuses, tout comme à Tesselit, marque une nette régression (de 1,3 à 0,9 %).

8 - Le forage de Bourarhet (fig. 33)

Les conditions sont très voisines de celles du forage précédent : épaisseur, profondeur, degré géothermique (34 m) sont comparables. Il n'y a pourtant que la cristallinité de l'illite qui enregistre la diagenèse d'enfouissement. Le "carbon ratio" oscille autour de 0,6 et le pouvoir réflecteur des charbons se maintient autour de 1,3 %.

III - VUE D'ENSEMBLE SUR LA MINERALOGIE DES ARGILES

Une vue d'ensemble sur ces nombreux forages et les étages divers qu'ils traversent est nécessaire pour saisir les nuances d'une sédimentation apparemment très homogène sous le rapport des minéraux argileux. On a groupé les résultats, en les simplifiant, sur la figure 34. Les compositions argileuses données pour chaque étage sont la moyenne arithmétique de toutes les mesures faites dans cet étage. Les forages y sont groupés en trois coupes est-ouest, le long desquelles les corrélations stratigraphiques ont un certain degré de sûreté :

1. Ou 101, OF 101, Es 101, NAL 101
2. Tf 101, Te 101
3. IR 1, Bt 1

On se reportera à la figure 24 pour voir la situation de ces trois coupes. Elles permettent de se faire une idée des variations latérales de la sédimentation, autrement dit de la paléogéographie du bassin aux différentes époques.

1 - L'Ordovicien

La sédimentation argileuse y est très uniforme. L'illite domine largement représentant 70 à 80 %. La chlorite est secondaire et la kaolinite accessoire. On verra par ailleurs que l'illite a

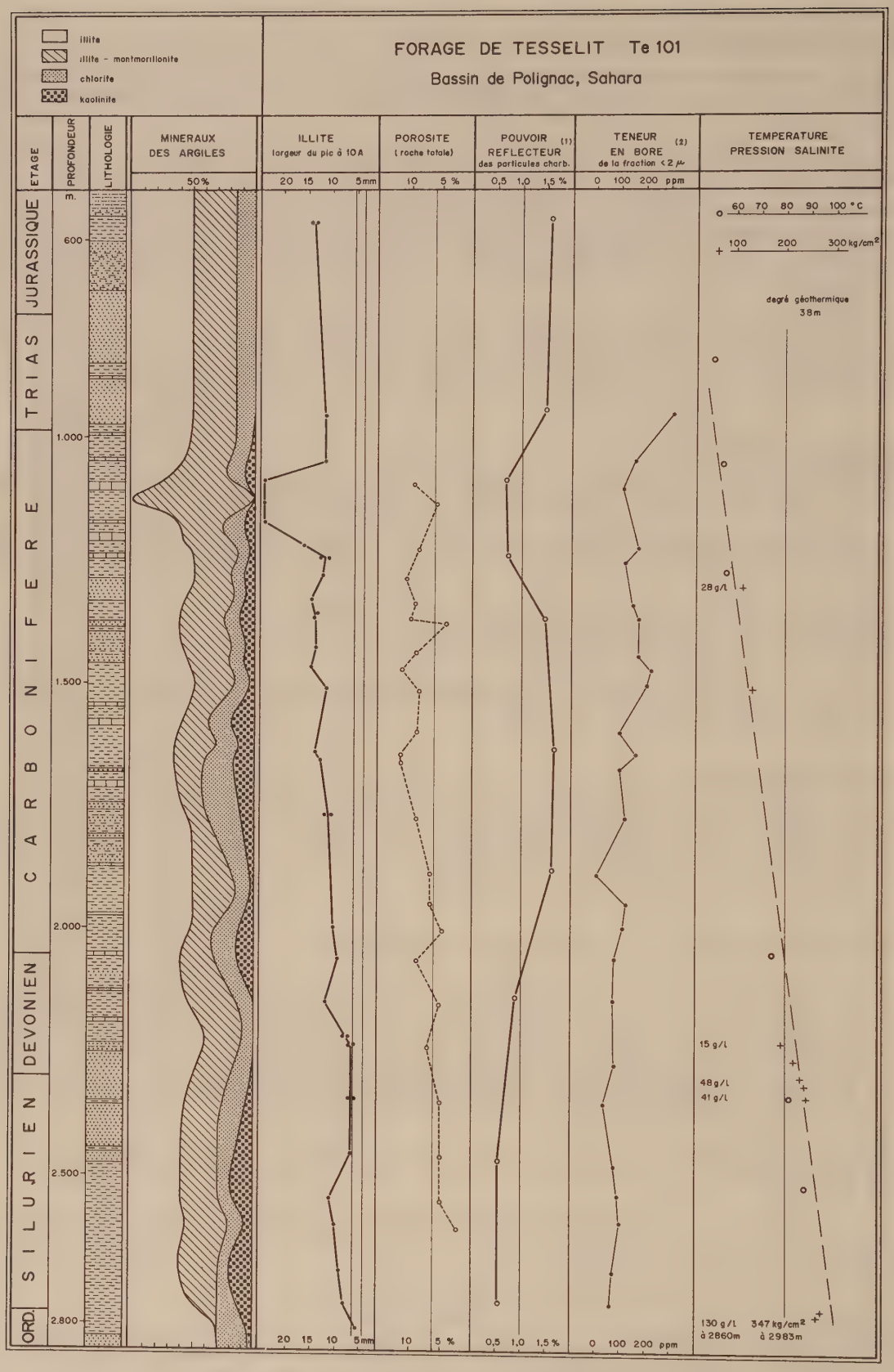


Fig. 31 - Forage de Tesselit (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR. (2) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA).

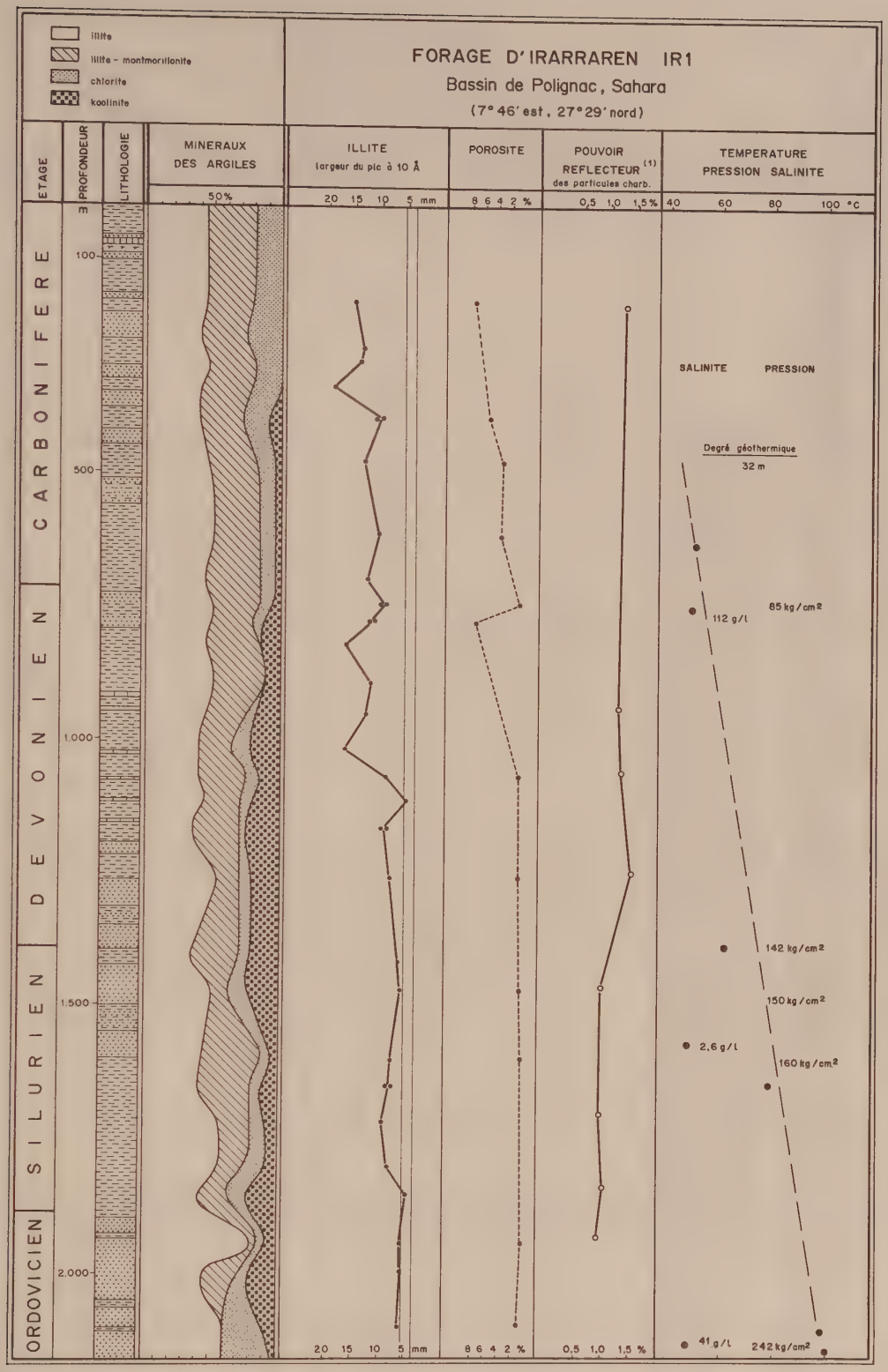


Fig. 32 - Forage d'Irarraren (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR.

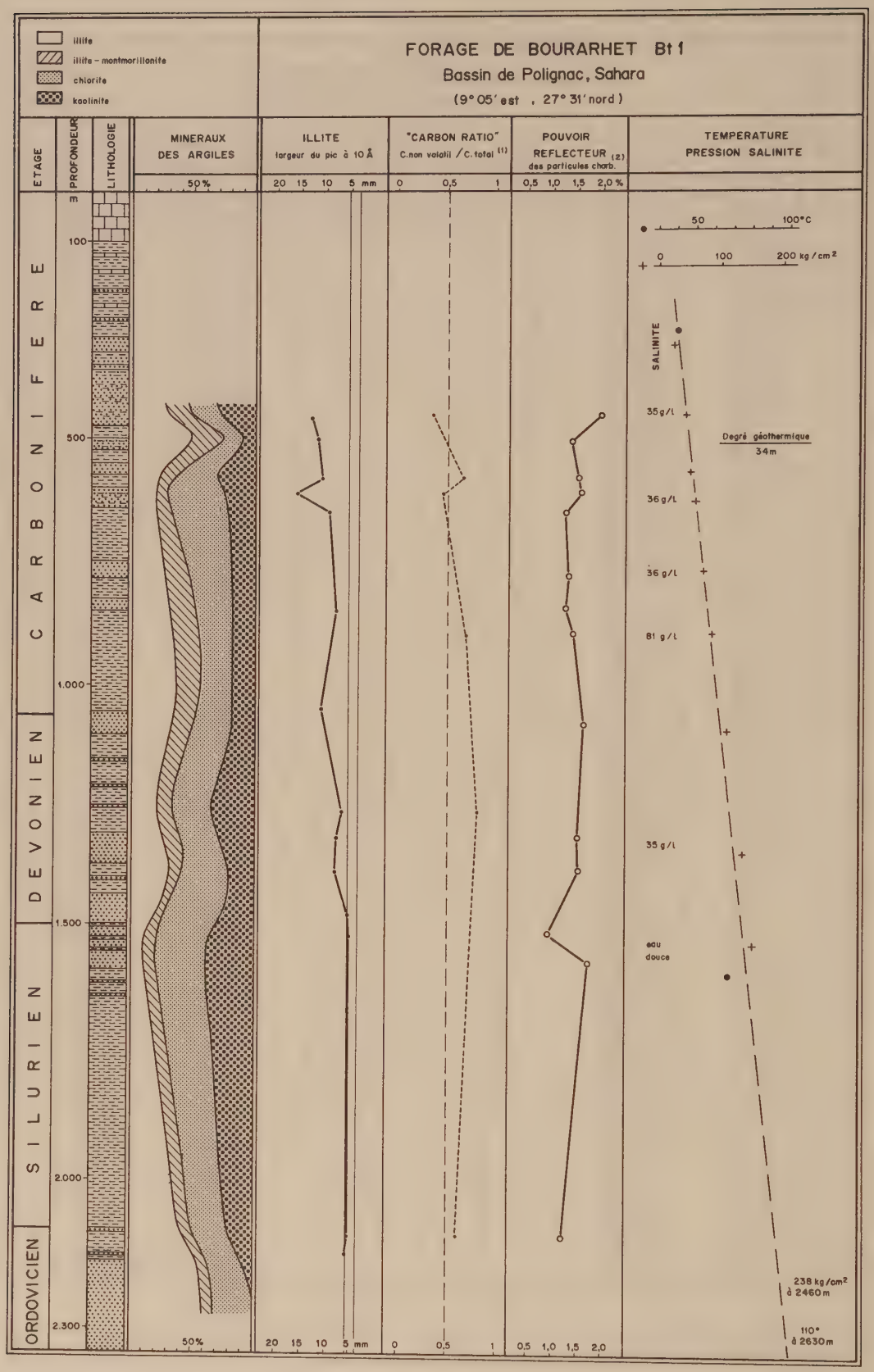


Fig. 33 - Forage de Bourarhet (bassin de Polignac). Analyses minéralogiques et chimiques. (1) Mesures effectuées au Centre de Recherches de Pau (SNPA). (2) Mesures effectuées par B. ALPERN au CERCHAR.

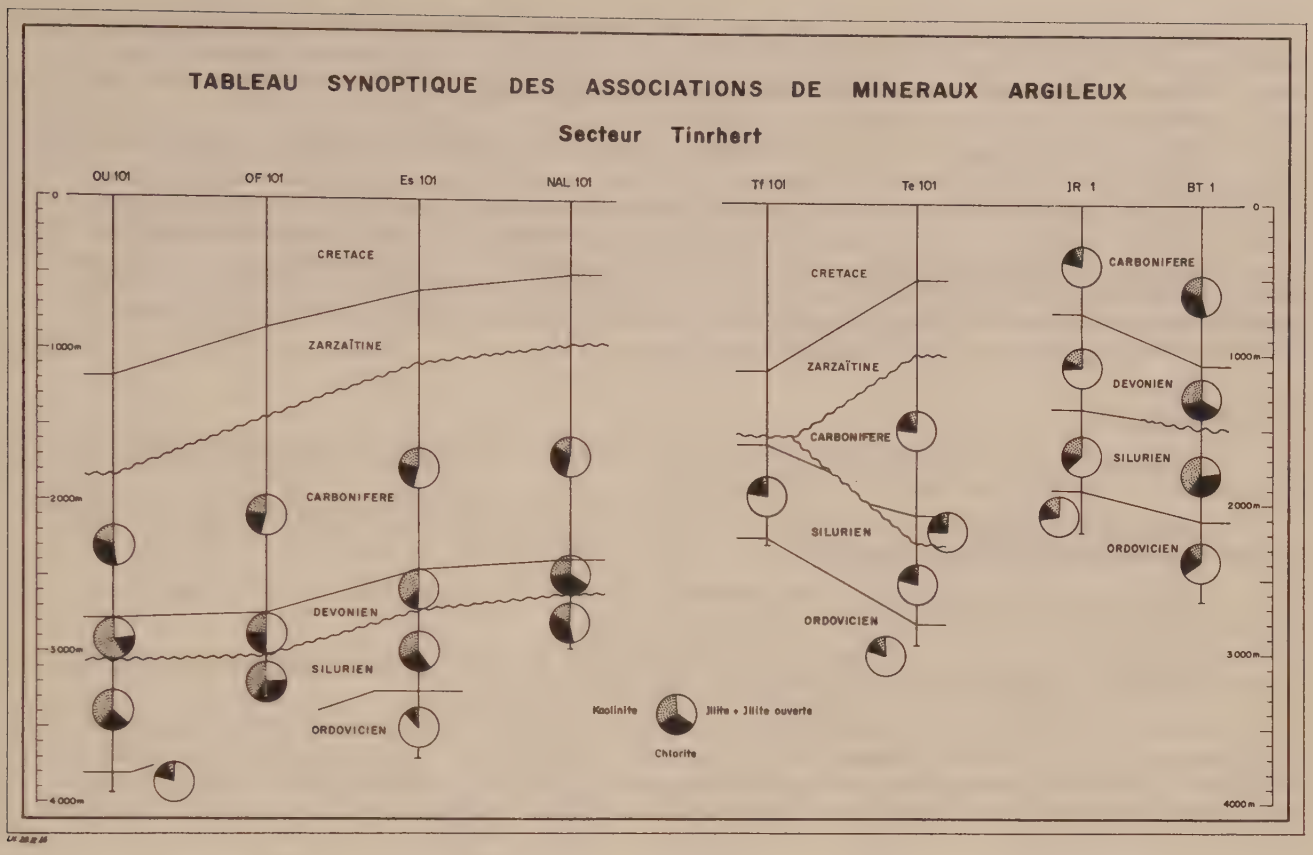


Fig. 34 - Bassin de Polignac. Tableau synoptique des associations de minéraux argileux.

une cristallinité particulièrement élevée. Ce sont là tous les caractères d'une sédimentation de mer périglaciaire où l'héritage est dominant, livrant à la sédimentation des minéraux fragmentés mais très peu altérés (MILLOT,1964, p. 164). Cette forte cristallinité de l'illite trouve son explication dans la très faible intensité des altérations chimiques sur le continent. L'illite détritique, arrachée par l'érosion aux vieilles séries métamorphiques émergées à l'époque, a conservé presque intacte la cristallinité élevée des schistes cristallins.

Les résultats sédimentologiques recoupent parfaitement deux catégories de renseignements :

1. Ils concordent avec les données de la sédimentation actuelle en mer froide (MURRAY et SAYYAB, 1965) ;

2. Ils concordent aussi avec la mise en évidence (DEBYSER, CHARPAL et MERABET, 1965 ; BEUF, BIJU-DUVAL, STEVAUX et KULBICKI, 1966) de phénomènes de glaciation au cours de l'Ordovicien.

Sur de tels sédiments, les effets de la diagenèse sont en général très discrets : les minéraux étant peu ou pas dégradés, les eaux connées peu concentrées à cause du caractère hyposalin des milieux de genèse, aucune agradation ou néoformation notable ne peut prendre place.

2 - Le Silurien

La figure 34 fait apparaître une hétérogénéité dans le Silurien : les forages se répartissent en deux groupes.

1. Un groupe occidental (Tf, Te, IR) où la sédimentation ordovicienne se prolonge avec une illite moins cristalline mais toujours largement dominante.

2. Un groupe oriental (Ou, Of, Es, NAL, Bt) où illite, chlorite et kaolinite sont à peu près à égalité.

Ainsi s'individualisent deux provinces (fig. 24). Une telle division avait déjà été proposée par YAPAUDJIAN (1964). Nous la retrouvons ici, mais avec une limite légèrement déplacée vers l'est car le forage Te 101 se rattache sans équivoque au groupe occidental sous le rapport des minéraux argileux.

L'étude déjà citée (BEUF et al., 1966) indique pour le Silurien (Gothlandien) argileux des conditions particulières, liées à la fonte rapide des glaces ordoviciennes : mer peu salée suggérée par les faibles teneurs en bore, transgression générale, caractère détritique peu altéré des minéraux argileux. Nous retrouvons ces caractères, en les nuançant par la mise en évidence de deux provinces sédimentaires dans le Tinrhert. On est tenté de placer au nord et à l'est les parties les moins profondes du bassin, celles où les apports détritiques reflètent encore les altérations continentales à kaolinite et chlorite. Cette manière de voir semble concorder avec les données acquises par ailleurs (YAPAUDJIAN, 1964, planche 11).

3 - Le Dévonien

La diversité augmente encore et l'absence du Dévonien à Tf 101 rend les choses moins claires. Trois types d'associations se présentent :

1. Illite très dominante à Te 101 et IR 1. On peut penser que la province occidentale définie au Silurien garde son individualité.

2. Illite, chlorite et kaolinite en proportions voisines : Of, Es, NAL, Bt. On retrouve là les caractères de la province orientale du Silurien.

3. Kaolinite dominante à Ou 101. Le caractère isolé de cette figure particulière ne permet guère d'en donner une interprétation à l'échelle du bassin.

On sait que la présence massive de kaolinite peut être aussi bien l'effet de la sédimentation au voisinage d'un continent où règnent des altérations kaolinisantes, que celui d'une diagenèse tardive sous l'influence des solutions interstitielles acides et diluées. L'observation en lame mince d'un ciment kaolinique dans les niveaux gréseux (2840 m) fait pencher vers la deuxième hypothèse.

4 - Le Carbonifère

Les deux provinces maintiennent leur individualité avec une inconnue sur Tf 101 où manque le Carbonifère. Te 101 et IR 1 poursuivent le même type de sédimentation argileuse depuis l'Ordovicien ; l'illite y domine largement.

La province orientale offre tous les caractères de la sédimentation argileuse des séries houillères, bien qu'il ne s'agisse pas ici de sédimentation houillère proprement dite. La description donnée par MILLOT (1964, p. 192) des associations argileuses dans les séries houillères s'applique parfaitement ici : "le minéral le plus fréquent est l'illite, accompagnée de son cortège habituel : chlorite, interstratifiés divers. La kaolinite est subordonnée". C'est bien ce qu'on observe ici.

5 - En conclusion, la sédimentation argileuse au Paléozoïque dans le bassin de Polignac se résume ainsi :

1. Ordovicien très homogène à illite très dominante.

2. Silurien, Dévonien et Carbonifère à sédimentation argileuse de type détritique (cf. MILLOT 1964, p. 226). Les deux forages Te 101 et IR 1 se distinguent par la forte teneur en illite ainsi que par la constance des associations argileuses. On suppose que Tf 101, dont on ne connaît que le Silurien, était placé dans les mêmes conditions.

3. La répartition des minéraux argileux suggère un bassin ouvert en direction du sud-ouest : le caractère marin du secteur sud-ouest se traduit par un rapport illite/kaolinite plus élevé.

4. La diagenèse tardive qui a affecté ces séries après leur enfouissement s'est exprimée de façon très discrète. Elle n'a provoqué aucun déséquilibre des minéraux du groupe de la kaolinite, aucune agradation sensible de la chlorite. L'illite seule a été touchée. Les indications qu'elle donne méritent qu'on s'y arrête un moment.

IV - LA RECRISTALLISATION DE L'ILLITE EN PROFONDEUR

La largeur du pic à 10 Å à mi-hauteur a été mesurée systématiquement et reportée sur les fig. 26 à 33. Elle exprime, rappelons-le, la régularisation du réseau de l'illite et, en particulier, l'élimination des interfoliaires gonflants donnant des interstratifications de type illite-montmorillonite.

La corrélation largeur-profondeur est sensible dans la plupart des forages (IR, Bt, Te, Es, Ou). On a regroupé les valeurs correspondantes sur la figure 35.

Les deux forages Of et Tf, en revanche, ne montrent aucune amélioration de l'illite (fig. 36).

Il nous a paru intéressant de préciser la corrélation cristallinité-profondeur en calculant la droite de régression

$$y = ax + b$$

y = largeur du pic à 10 Å en mm
x = profondeur d'enfouissement en m.

On a calculé aussi le coefficient de corrélation r.

Les résultats sont groupés sur le tableau suivant par ordre de gradient thermique croissant.

Tableau XIII

Bassin de Polignac. Corrélation "cristallinité de l'illite-prodondeur" selon la relation largeur $(001)_{\text{Å}} = a \times (\text{profondeur})_{\text{m}} + b$ r = coefficient de corrélation.

FORAGE	a	b	r	degré géothermique
Tf	- 0,0017	12,9	- 0,23	50 m
Of	- 0,0009	13,1	- 0,23	46
Ou	- 0,0020	14,7	- 0,61	42
Es	- 0,0034	17,8	- 0,91	41
NAL	- 0,0038	17,9	- 0,77	40
Te	- 0,0035	17,9	- 0,71	38
Bt	- 0,0051	15,0	- 0,81	34
IR	- 0,0046	14,8	- 0,72	32

Ces chiffres permettent d'énoncer les conclusions suivantes :

1. b représente la cristallinité extrapolée pour une profondeur nulle. Il est intéressant de remarquer que b n'est pas constant, mais varie entre 13 et 18. Cette variation peut être mise sur le compte des séries enlevées par érosion, dont l'importance pourrait ainsi être estimée.

2. la pente de la droite de régression, a, est toujours négative, ce qui exprime une agradation en profondeur pour tous les forages. Cette pente est faible, ce qui veut dire que la diagenèse d'enfouissement est peu poussée. Enfin cette pente est en gros d'autant plus forte que le gradient thermique est plus élevé (fig. 37 et 38).

3. le coefficient de corrélation r est négatif, comme la pente. Il s'ordonne lui aussi comme le gradient thermique (fig. 37 et 38). Remarquons en outre que deux coefficients de corrélation sont nettement faibles (- 0,23) ; il s'agit précisément des deux forages où le gradient thermique est le plus faible ; que le coefficient le plus proche de l'unité (- 0,91) est relatif au forage d'Ouine Eslak qui s'est déjà singularisé par un accroissement important et régulier du "carbon ratio" (voir p. 88).

Par ailleurs, la caractérisation de l'illite selon la méthode d'ESQUEVIN (1969) ne permet guère de déceler les agradations diagénétiques qu'on vient de mettre en évidence. Les points forment un nuage imprécis (fig. 39). Il est probable que les variations de constitution chimique de l'illite sur une aussi longue période géologique réalise un éparpillement des points selon l'axe des abscisses qui empêche de saisir les groupements. Cela démontre l'intérêt qu'il y a à utiliser plu-

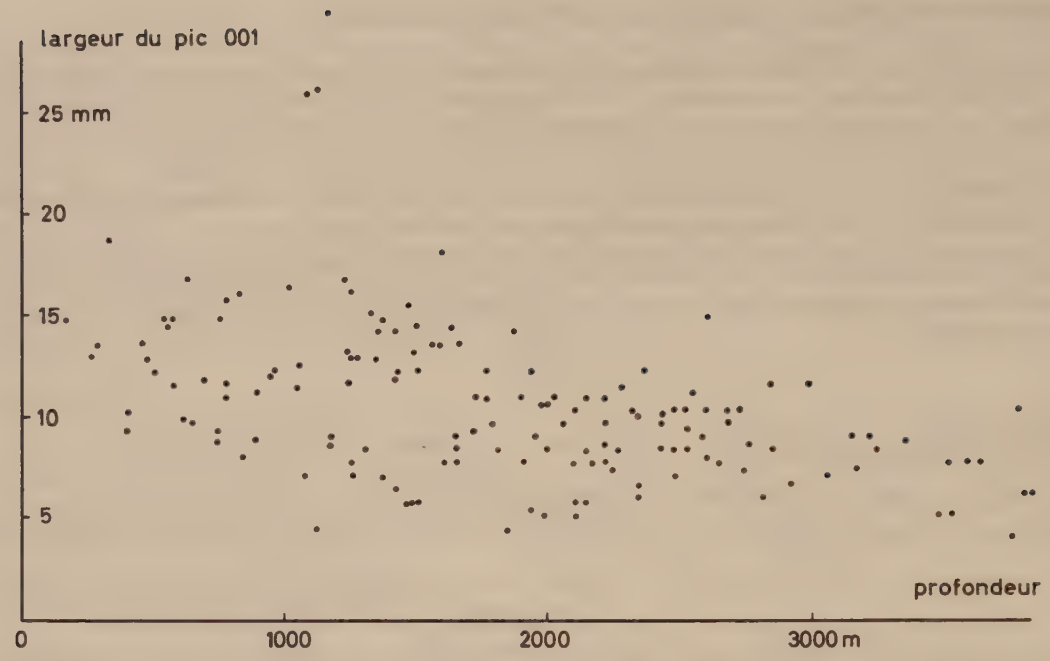


Fig. 35 - Bassin de Polignac. Cristallinité de l'illite et profondeur d'enfouissement pour les six forages dont le gradient géothermique est le plus fort : IR, Bt, Te, NAL, Es, Ou.

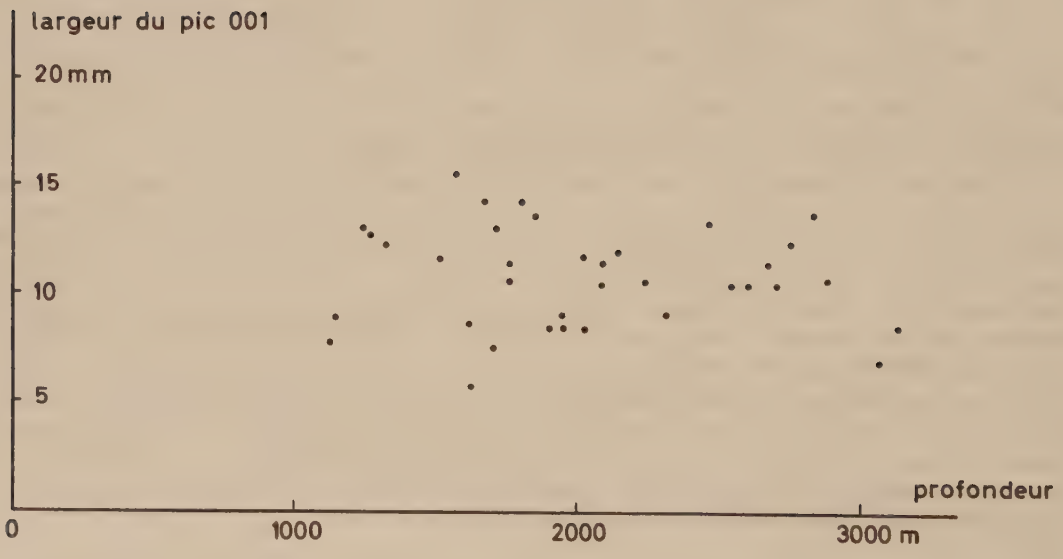


Fig. 36 - Bassin de Polignac. Cristallinité de l'illite et profondeur d'enfouissement pour les deux forages dont le gradient géothermique est le plus faible : Of et Tf.

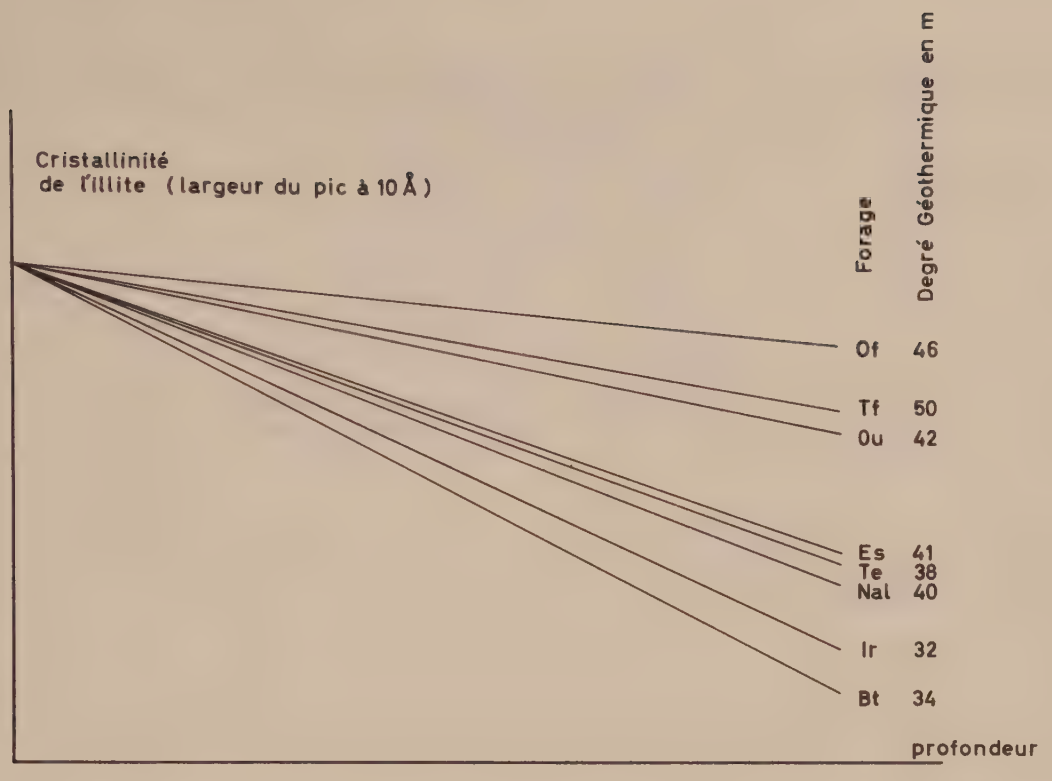


Fig. 37 - Bassin de Polignac. Droites de corrélation "cristallinité de l'illite/profondeur". On a donné à toutes les droites la même ordonnée à l'origine pour pouvoir mieux comparer les pentes.

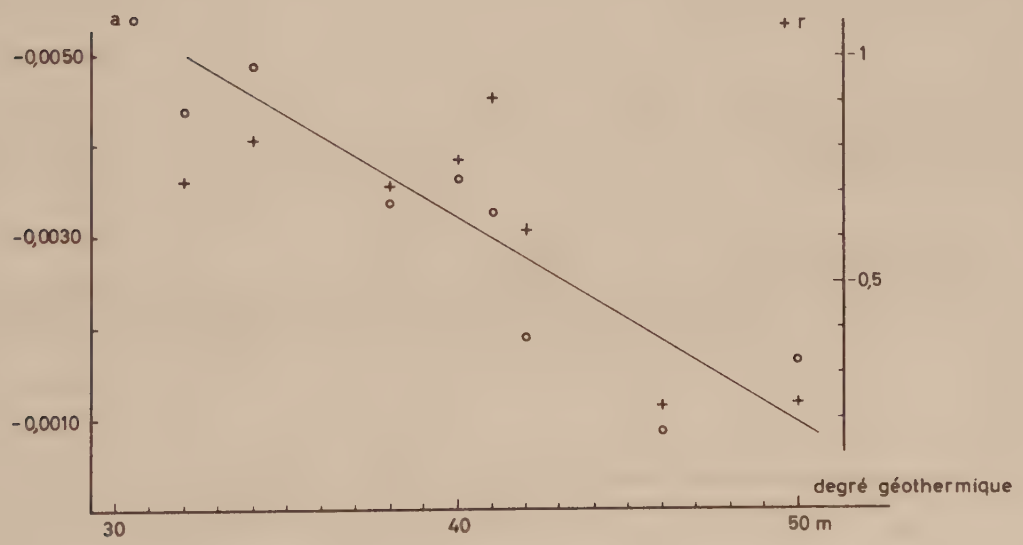


Fig. 38 - Bassin de Polignac. Relation entre le degré géothermique et la corrélation : largeur (001) = a x profondeur + b

a = pente de la droite de corrélation
r = coefficient de corrélation.

sieurs méthodes indépendantes pour caractériser une évolution. Cet intérêt est particulièrement fort quand les évolutions sont aussi discrètes que dans le cas présent.

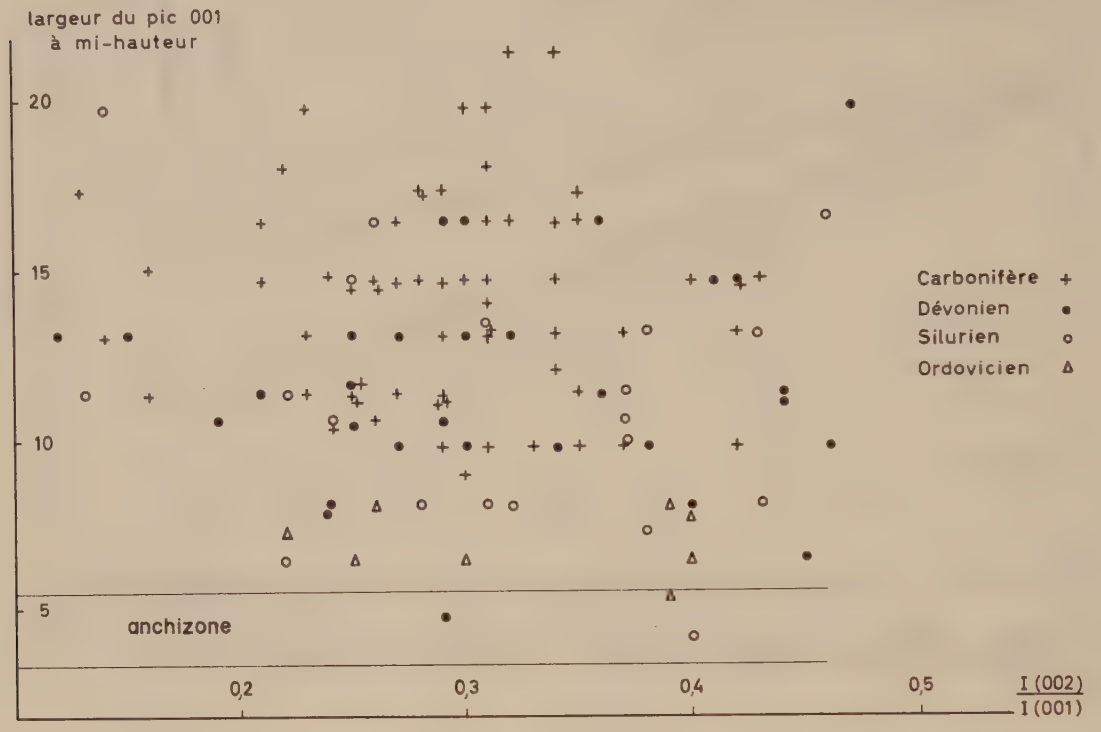


Fig. 39 - Bassin de Polignac. Caractérisation de l'illite selon la méthode d'ESQUEVIN (1969) pour l'ensemble des huit forages.

V - LA CARBONIFICATION DE LA MATIERE ORGANIQUE

Elle peut être chiffrée par la mesure du pouvoir réflecteur des particules charbonneuses et par celle du "carbon ratio".

1 - Le pouvoir réflecteur des particules charbonneuses (vitrinite)

Il a été étudié par ALPERN au Centre d'Etudes et Recherches des Charbonnages de France (CERCHAR). J'ai indiqué les résultats des mesures sur les figures 26 à 33. En considérant l'ensemble des résultats, on est amené à formuler avec ALPERN (1967) les conclusions suivantes.

a - Certains forages voient le pouvoir réflecteur croître avec la profondeur. Ce sont : Es, NAL, Tf. Cette relation est normale.

b - Certains forages présentent au contraire une diminution du pouvoir réflecteur vers le bas : IR, Bt, Te. Cette décroissance est anormale et rarement observée.

c - Deux forages ne montrent aucune corrélation entre pouvoir réflecteur et profondeur : Ou, Of.

d - Les différences de comportement ci-dessus sont sans rapport avec le degré géothermique.

e - Le groupement des résultats concernant l'ensemble des huit forages fait apparaître une corrélation entre pouvoir réflecteur et profondeur à l'exception du Silurien. Les moyennes par étage donnent les chiffres suivants :

Tableau XIV

Bassin de Polignac. Pouvoir réflecteur moyen par étage, d'après ALPERN (1967)

ETAGE	P.R. %
Carbonifère sup.	1,13
Carbonifère inf.	1,22
Dévonien	1,26
Silurien (Gothl.)	1,12

f - Les pouvoirs réflecteurs moyens (1,12 à 1,26) situent les particules charbonneuses dans la catégorie des houilles grasses (medium to high volatile bituminous coals).

2 - Le "carbon ratio"

Il s'agit ici d'un paramètre qui n'est pas exactement le "carbon ratio" de la technologie du charbon. On l'a défini comme le "rapport des teneurs en carbone d'un échantillon après et avant pyrolyse à 900°C". Les mesures ont été effectuées par VAN DER WEIDE au Centre de Recherches de Pau (SNPA).

La diagenèse d'enfouissement réalise une pyrolyse très lente qui doit se traduire par une augmentation du "carbon ratio". Cette augmentation sera sensible si le "carbon ratio" originel est le même dans toute la série. Or ce n'est généralement pas le cas. Les matières organiques d'origine continentale (ligneuses, humiques) ont au départ des "carbon ratio" de l'ordre de 0,6. Les matières organiques de type marin (animal, planctonique) sont beaucoup plus riches en molécules volatiles et leur "carbon ratio" peut s'abaisser jusqu'à 0,1.

Les mesures faites dans le bassin de Polignac ont été reportées sur certaines des figures synthétiques relatives à chaque forage (fig. 26 à 33). Les variations du "carbon ratio" y apparaissent comme désordonnées entre les valeurs de 0,3 et 0,8. Ce n'est que dans le forage d'Ouine Eslak (fig. 28) qu'il s'élève régulièrement de 0,39 à 0,77. L'exploitation statistique de l'ensemble des données, faite par VAN DER WEIDE, permet cependant de conclure à une augmentation en profondeur du "carbon ratio", c'est-à-dire à la manifestation d'une diagenèse d'enfouissement. Celle-ci est bien marquée dans le Carbonifère, moins nette dans le Dévonien, visible dans le Silurien (Gothlandien), où quelques valeurs faibles à la base sont probablement le signe d'une matière organique différente à évolution plus lente.

Le milieu de sédimentation n'a certes pas été constant à travers tout le bassin sur une aussi longue période. Les variations concomitantes du bore et de l'illite sont l'écho de ces changements d'ordre sédimentologique dans certains forages. Les débris organiques continentaux tels que spores, pollens, fragments ligneux peuvent être apportés en quantité dans un milieu marin franc. Ils ne nous renseignent donc pas sur la nature du milieu de dépôt. C'est la composition chimique de la matière organique elle-même qui doit nous renseigner sur son origine.

En définitive, dans le cas du bassin de Polignac, on peut retenir comme un effet discret de la diagenèse d'enfouissement l'augmentation statistique du "carbon ratio" de la matière organique de chaque étage en fonction de la profondeur d'enfouissement.

VI - LES PHENOMENES DU COMPACTION

La densité et la porosité des roches ont été mesurées selon la méthode simple exposée p. 45 pour trois des forages étudiés (fig. 30, 31 et 32). Les résultats ont été regroupés dans le tableau XV.

La figure 40 donne une idée du gradient de compaction. Il est sensiblement le même pour Tesselit et Oued Tifist. Il a une valeur très proche de celle que fournissent les études statistiques sur la compaction (WELLER, 1959; ROUKHINE, 1961).

Le forage d'Irarraren se distingue par une compaction élevée, traduisant vraisemblablement un enfouissement maximal très supérieur à l'enfouissement actuel. Il est très intéressant de re-

Tableau XV

Bassin de Polignac. Mesures de densité et de porosité des roches totales

m	d	D	P
1250	2,50	2,10	16,0
1630	2,63	2,56	2,6
1712	2,59	2,49	3,8
1776	2,60	2,50	3,8
1915	2,59	2,55	1,5
1957	2,62	2,61	0,4
OUED TIFIST			
184	2,55	2,35	7,8
400	2,66	2,52	5,2
475	2,62	2,53	3,4
615	2,62	2,53	3,4
753	2,59	2,58	0,4
778	2,77	2,56	7,5
1075	2,62	2,60	0,8
1262	2,69	2,67	0,7
1474	2,88	2,86	0,7
1608	2,66	2,65	0,3
1943	2,69	2,68	0,3
2170	2,71	2,69	0,7
IRARRAREN			
560	2,62	1,98	24,4
950	2,64	1,99	24,6
1059	2,53	2,15	15,0
1092	2,69	2,43	9,6
1134	2,28	2,13	5,9
1177	2,65	2,30	13,2
1226	2,61	2,38	8,8
1247	2,63	2,27	13,6
1282	2,50	2,23	10,8
1335	2,58	2,34	9,3
1367	2,62	2,35	10,3
1373	2,42	2,32	4,1
1434	2,54	2,31	9,0
1470	2,64	2,32	12,1
1509	2,55	2,32	8,6
1597	2,63	2,39	9,1
1641	2,71	2,38	12,1
1665	2,86	2,51	12,2
1770	2,63	2,39	9,1
1890	2,63	2,45	6,8
1947	2,72	2,53	6,9
2002	2,66	2,53	4,8
2062	2,73	2,48	9,1
2152	2,64	2,51	5,6
2220	2,71	2,66	1,8
2244	2,79	2,59	7,1
2351	2,74	2,60	5,1
2481	2,74	2,60	5,1
2763	2,75	2,61	5,0
2810	2,75	2,69	2,1
TESSELIT			

m profondeur en m
d densité de l'échantillon pulvérisé
D densité de la roche globale
P porosité en %

marquer que c'est précisément celui des huit forages où le gradient géothermique est le plus fort et où la recristallisation de l'illite progresse particulièrement vite (voir fig. 37). Pour une densité de 2,5, l'écart d'enfouissement entre Irarraren et Tesselit serait de 1600 m ; ce chiffre doit correspondre à l'épaisseur des sédiments enlevés par érosion.

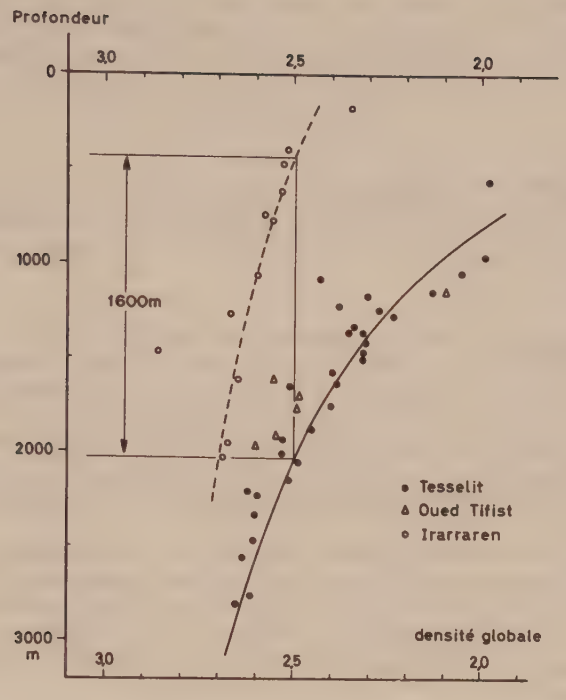


Fig. 40 - Bassin de Polignac. Compaction des sédiments en relation avec la profondeur.

VII - RESUME DES PRINCIPAUX FAITS RELATIFS AU BASSIN DE POLIGNAC

1 - Les sédiments paléozoïques dans le bassin de Polignac

Le Cambro-ordovicien est une série gréseuse à faciès détritique fluviatile et littoral à sa base, à faciès glaciaire à son sommet. Les minéraux argileux y sont l'illite et la chlorite, héritées d'un continent où les altérations chimiques étaient peu poussées.

Silurien (Gothlandien), Dévonien et Carbonifère forment un puissant ensemble détritique, argilo-gréseux, où les minéraux argileux sont l'illite, plus ou moins interstratifiée avec de la montmorillonite, la chlorite et la kaolinite. Des nuances dans les pourcentages de ces minéraux permettent de caractériser les étages et les provinces de sédimentation. Il s'agit d'une sédimentation marine, mais, d'une manière générale, les influences continentales sont très marquées ; elles se traduisent, entre autres, par la faible teneur en bore de la fraction argileuse.

2 - Les facteurs de l'évolution diagénétique

Les seuls facteurs d'évolution post-sédimentaire sont ceux liés à l'enfouissement. Cet enfouissement a été peut-être plus important qu'il ne l'est actuellement dans certaines parties du bassin. On a tout lieu de croire que d'épaisses séries primaires, dévoniennes en particulier, ont été érodées sur le Hoggar. Il a du en être ainsi également dans le bassin.

Les profondeurs d'enfouissement actuelles ne dépassent guère 2700 m pour le Carbonifère, 3000 m pour le Dévonien, et 3800 m pour le Silurien. On verra dans le paragraphe suivant comment l'étude de la compaction permet, en retour, d'évaluer la profondeur maximale atteinte par enfouissement.

Les gradients géothermiques sont relativement faibles, correspondant à des degrés géothermiques compris entre 32 et 50 m. La température maximale atteinte par le Silurien est de 115°C. La pression hydrostatique n'offre aucune valeur s'écartant notablement du gradient normal de 100 kg/cm^2 pour 1000 m.

La salinité des aquifères profonds est connue par les tests de forage. Elle varie dans chaque réservoir en fonction des caractéristiques pétrophysiques et du régime hydrodynamique de celui-ci. De nombreuses données, non publiées, existent sur ce sujet. Mais sur la salinité des solutions interstitielles liées aux argiles, l'un des facteurs essentiels des recristallisations, on ne sait pratiquement rien.

3 - Les résultats de la diagenèse d'enfouissement

Ils peuvent se lire dans la compaction des sédiments, dont la densité globale passe de 2,0 à 2,7, et dans l'évolution de deux types de constituants : la matière organique et les minéraux argileux du groupe de l'illite.

a - La matière organique a subi une maturation complexe dont le résultat le plus intéressant est la genèse d'hydrocarbures. Le bassin de Polignac est effectivement une région productrice. La carbonification de la matière organique n'est pas ici directement liée à l'enfouissement comme dans d'autres bassins (forages de Pierrefeu, de Gironville). Le "carbon ratio", légèrement croissant à l'intérieur de chaque étage, oscille autour de 0,5. Le pouvoir réflecteur de la vitrinite varie de façon imprévue (positive, négative ou quelconque). La valeur moyenne est assez élevée (1,2 %) ce qui situe les particules charbonneuses dans la catégorie des charbons gras.

b - La compaction. Les données sur la compaction présentées ici et celles obtenues à partir des diagraphies acoustiques (études en cours dans les laboratoires ELF-R.E.) montrent un gradient de compaction assez constant dans tout le bassin. On peut donc calculer l'épaisseur des séries enlevées par l'érosion et déterminer leur âge le plus probable par extrapolation des cartes d'isopaques. Les ordonnées à l'origine b ainsi obtenues sont les suivantes, si on prend b = 0 pour le forage d'Oudoumé :

Oudoumé	b = 0	
Tesselit	b = 0	
Tifist	b = 500	enfouissement maximal au Mésozoïque
Irarraren	b = 1200	enfouissement maximal au Paléozoïque

Les chiffres ci-dessus, obtenus à partir des diagraphies acoustiques, sont du même ordre de grandeur que ceux qui ont été déterminés ici (fig. 40).

c - La fermeture de l'illite,

- l'épaisseur du pic à 10 Å diminue statistiquement avec la profondeur (10 à 5 mm). Cela correspond à la régularisation progressive des interfoliaires, à une fermeture des feuillets. On dit encore que la "cristallinité" de l'illite s'améliore.

- la rapidité de cette fermeture est fonction directe du gradient géothermique (pente de la droite de régression).

- la corrélation cristallinité-profondeur est d'autant meilleure que le gradient géothermique est plus fort.

On peut dire, pour conclure, que le Paléozoïque du bassin de Polignac a subi dans son ensemble une diagenèse d'enfouissement modérée dont les effets se résument comme suit :

- cette diagenèse a été suffisante pour provoquer la genèse et la migration d'hydrocarbures, et pas assez intense pour provoquer leur craquage ;

- cette diagenèse se traduit dans la compaction des sédiments selon un gradient identique pour tout le bassin et directement lié à l'enfouissement maximal, très différent de ce qu'il est aujourd'hui ;

- cette diagenèse a entraîné une recristallisation de l'illite dont l'intensité est en relation avec le gradient géothermique, variable d'un point à l'autre du bassin ;

- cette diagenèse discrète n'a pas touché la kaolinite.

CHAPITRE III

LE TRIAS GRÈSEUX DANS LE SAHARA DU NORD-EST

Il s'agit de deux forages exécutés en 1960 et 1961 dans l'extrême nord du Sahara, sur la bordure nord-est du grand bassin mésozoïque appelé aussi "bassin salifère" (fig. 23)(1).

Le Trias comporte en effet une importante série salifère dans sa partie supérieure. La partie inférieure est argilo-gréseuse. C'est elle qui est étudiée ici. Le grand nombre des forages ayant traversé ces formations permet de se faire une idée de leur répartition stratigraphique et paléogéographique. Les travaux récents de BUSSON (1968) démontrent que ce "Trias gréseux" du Sahara du nord-est est en fait un faciès hétérochrone.

I - LE FORAGE DE PA 1

Il s'agit d'un forage exécuté par la Compagnie Française des Pétroles en Algérie (CFP.A) dans le courant de l'année 1960. Il est situé dans l'extrême nord du Sahara dans la région de Djamaa entre Laghouat et Touggourt par 5° 12' 31" de longitude est, et 33° 46' 00" de latitude nord (fig. 23).

Il a traversé 65 m de Mio-Pliocène, puis 216 m de dolomies de l'Eocène, 1659 m de Crétacé et 1365 m de Jurassique. Il est entré à 3305 m de profondeur dans le Trias comprenant au sommet une "série évaporitique" de 372 m de puissance, surmontant une "série argilo-salifère" épaisse de 181 m. A la base du Trias on traverse une "série gréseuse", entre les profondeurs de 3858 et 4114 m. Ce Trias repose sur des quartzites du Cambro-ordovicien dans lesquels le forage s'est arrêté à 4313 m de profondeur.

Les échantillons de la "série gréseuse" du Trias, carottes et cuttings, ont été étudiés ici. La lithologie de cette série a été représentée sur la fig. 41. On remarque que la moitié supérieure est beaucoup plus variée que la partie inférieure. Jusqu'à 4000 m de profondeur se succèdent rapidement des faciès divers où reviennent fréquemment l'anhydrite et la dolomite. Au-dessous dominent les grès, formant une masse presque continue de 4000 à 4110 m de profondeur, interrompue seulement par des lits argileux et quelques passées marneuses ou dolomitiques.

1 - Minéralogie de la fraction argileuse

La figure 41 donne une idée de la composition très simple des minéraux argileux dans cette série gréseuse. L'illite est presque seule, accompagnée parfois de chlorite dont la répartition est irrégulière. Une telle composition est particulièrement favorable à l'étude cristallochimique de l'illite, mais la faible quantité d'échantillon dont je disposais ne m'a pas permis de faire les analyses chimiques nécessaires.

La seule approche possible de la cristallochimie de l'illite est alors l'utilisation des paramètres "épaisseur du pic 001 à mi-hauteur" ou "cristallinité", et "rapport d'intensité des pics

---

(1) Je remercie la Compagnie Française des Pétroles et la Société Nationale des Pétroles d'Aquitaine de m'avoir permis d'obtenir ces résultats et de m'autoriser à les présenter.

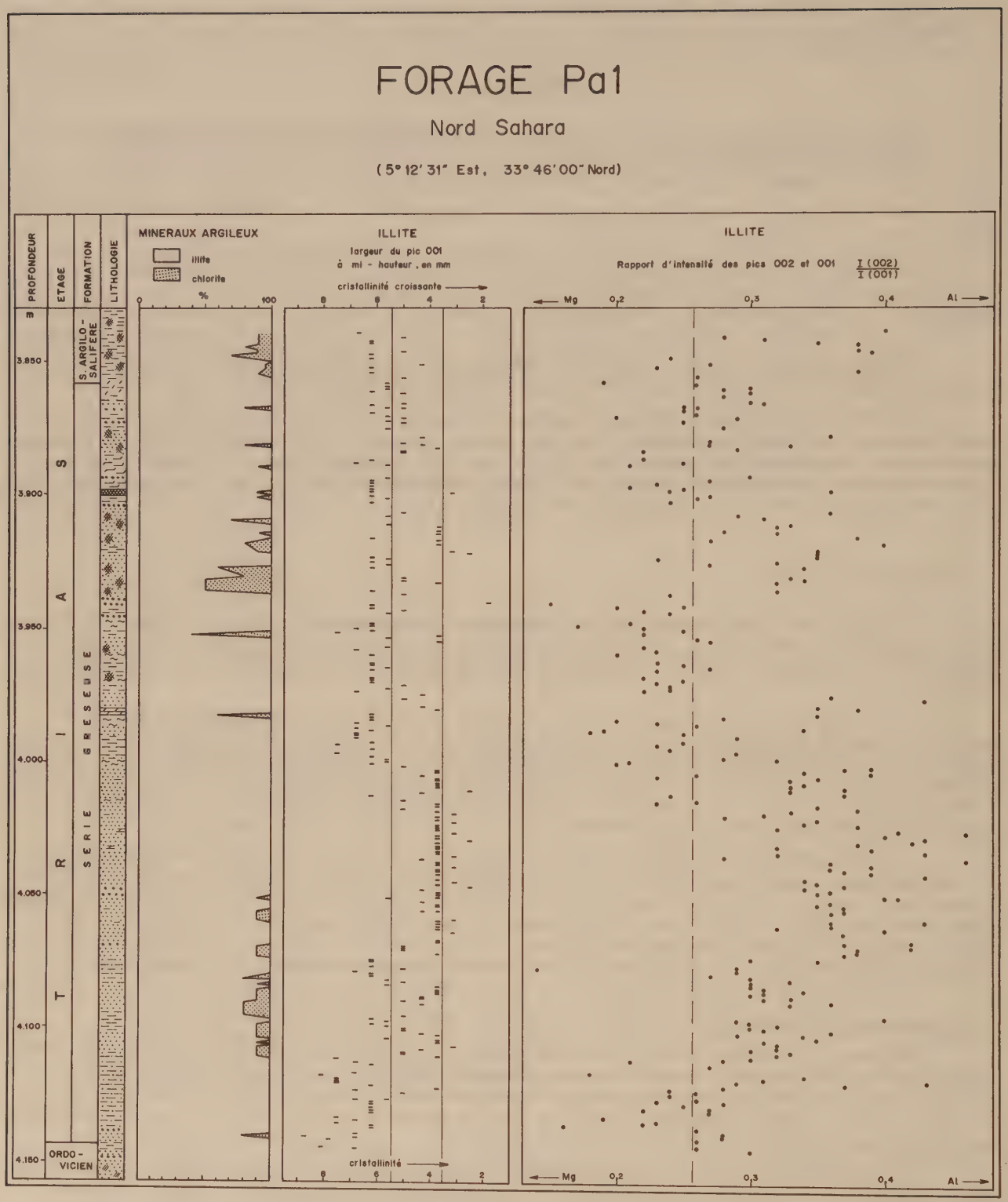


Fig. 41 - Forage de PA 1. Analyses minéralogiques.

002 et 001". Ces deux valeurs sont reportées sur la figure 41. L'examen attentif des diagrammes ainsi obtenus permet de faire un certain nombre d'observations.

a) La cristallinité est généralement assez forte, à la limite supérieure de l'anchizone. Il s'agit d'une valeur anormalement forte, compte tenu des conditions de température et de pression au fond. La température moyenne y est de 110°C et la pression hydrostatique de l'ordre de 580 kg/cm^2 (597 à 3891 m, 562 à 4121 m). La raison d'une aussi forte cristallinité doit être recherchée soit dans les conditions d'altération continentale au Trias inférieur, qui devraient être alors très peu dégradantes, soit dans un milieu géochimique de diagenèse favorable à la recristallisation des illites. On verra que les observations qui suivent donnent des arguments à la seconde hypothèse.

b) La cristallinité augmente brusquement au dessous de la cote 4000, reste élevée jusqu'à 4070 m puis décroît progressivement jusqu'à l'Ordovicien.

c) Le rapport I(002)/I(001) a des fluctuations assez importantes entre 0,2 et 0,4. Rappelons qu'il est directement proportionnel au rapport Al/Mg dans la couche octaédrique de l'illite. Il augmente brusquement entre les mêmes cotes que la cristallinité.

2 - Evolution diagénétique et géochimie

La prise en considération des observations qui précèdent et l'examen simultané de la séquence lithologique (fig. 41) montre une relation évidente entre faciès gréseux et recristallisation de l'illite.

Au-dessus de la cote 4000 la lithologie est constamment variable, les grès étant interrompus par des niveaux argileux dolomitiques, marneux, imprégnés d'anhydrite. La chimie des illites est alors très variable et la cristallinité, assez élevée déjà, oscille autour de 5,5.

De 4000 à 4075 m, c'est une masse gréseuse pratiquement continue, de granulométrie constante (200 à 300 µ). C'est ici que l'illite est très "cristalline" (3,5) ; c'est ici aussi qu'elle est particulièrement alumineuse.

Entre 4075 et 4140 m le grès se charge peu à peu de niveaux argileux, la cristallinité décroît peu à peu, le caractère alumineux des octaèdres diminue peu à peu.

On voit donc se confirmer de façon extrêmement nette une loi statistique mise en évidence par ESQUEVIN (1969) selon laquelle l'illite a une cristallinité d'autant plus forte qu'elle est plus alumineuse, à conditions thermodynamiques égales. C'est lorsque le rapport I(002)/I(001) devient supérieur à 0,26 que la cristallinité peut prendre des valeurs particulièrement élevées.

Il reste une question en suspens. En effet, si le caractère alumineux des illites est lié au faciès gréseux, est-ce une acquisition par héritage au moment de la sédimentation ou une métasomatose postsédimentaire ? La question est justifiée par le fait que la porosité des grès permet la circulation de solutions qui peuvent apporter ou soustraire certains éléments au milieu. LONG et NEGLIA (1968) ont montré que l'illitisation en profondeur de certaines séries était en relation avec des aquifères riches en potassium. Mais dans le cas présent, si c'est bien d'aluminium qu'il s'agit, il est difficile d'imaginer la migration de cet élément sous forme ionique. En revanche, si l'aluminium était présent dans la roche aussitôt après la sédimentation, peut-être l'était-il dans une autre structure que celle de l'illite, par exemple dans celle de la kaolinite. Les grès que nous décrivons ici offrent les mêmes caractères microscopiques que les grès paléozoïques du réservoir d'Hassi-Messaoud. On sait que leur ciment argileux, kaolinique, a évolué en dickite au cours de la diagenèse d'enfouissement (KULBICKI et MILLOT, 1960; FERRERO et KUBLER, 1964; CASSAN et LUCAS, 1966), et qu'ensuite une illitisation générale a pris place sous l'action des eaux salées interstitielles de la base du gisement (KULBICKI et MILLOT, 1960). La dickite apparaissait comme une rareté lorsqu'elle fut mise en évidence par FERRERO et KUBLER (1964). Il s'est avéré depuis lors qu'elle correspondait à une forme stable, donc fréquente, de la recristallisation de la kaolinite dans les faciès gréseux en profondeur. Elle cristallise en éventails de cristaux tabulaires dont le diamètre peut atteindre 20 à 30 µ. La diffraction des rayons X confirme la présence de dickite lorsque l'examen microscopique la laisse seulement pressentir. La question de la dickite sera reprise de façon approfondie dans la V° partie de ce mémoire. On verra que l'expérience acquise permet de penser que la dickite a pu cristalliser dans ces niveaux gréseux du Trias, tout comme dans ceux du Cambro-ordovicien à Hassi-Messaoud ou ceux du Crétacé à Logbaba.

On est ainsi conduit à proposer la chronologie suivante pour l'évolution du Trias gréseux dans le forage de Pa 1 :

1/ Dépôt d'une série détritique à illite, chlorite, interstratifiés gonflants, kaolinite.

2/ Diagenèse d'enfouissement provoquant la disparition des minéraux gonflants et de la kaolinite et l'agradation de l'illite. Dans les niveaux gréseux, les solutions acides induisent la cristallisation de la dickite, stable en profondeur.

3/ La circulation de solutions salines concentrées dans les gros bancs gréseux provoque la destruction de la dickite, ainsi qu'une illitisation poussée, confirmée par l'observation en lame mince. L'illite ainsi formée s'enrichit en aluminium issu de la dégradation de la dickite.

4/ L'illite des grès est relativement plus "cristalline" puisqu'elle est relativement plus riche en aluminium que dans le reste de la série.

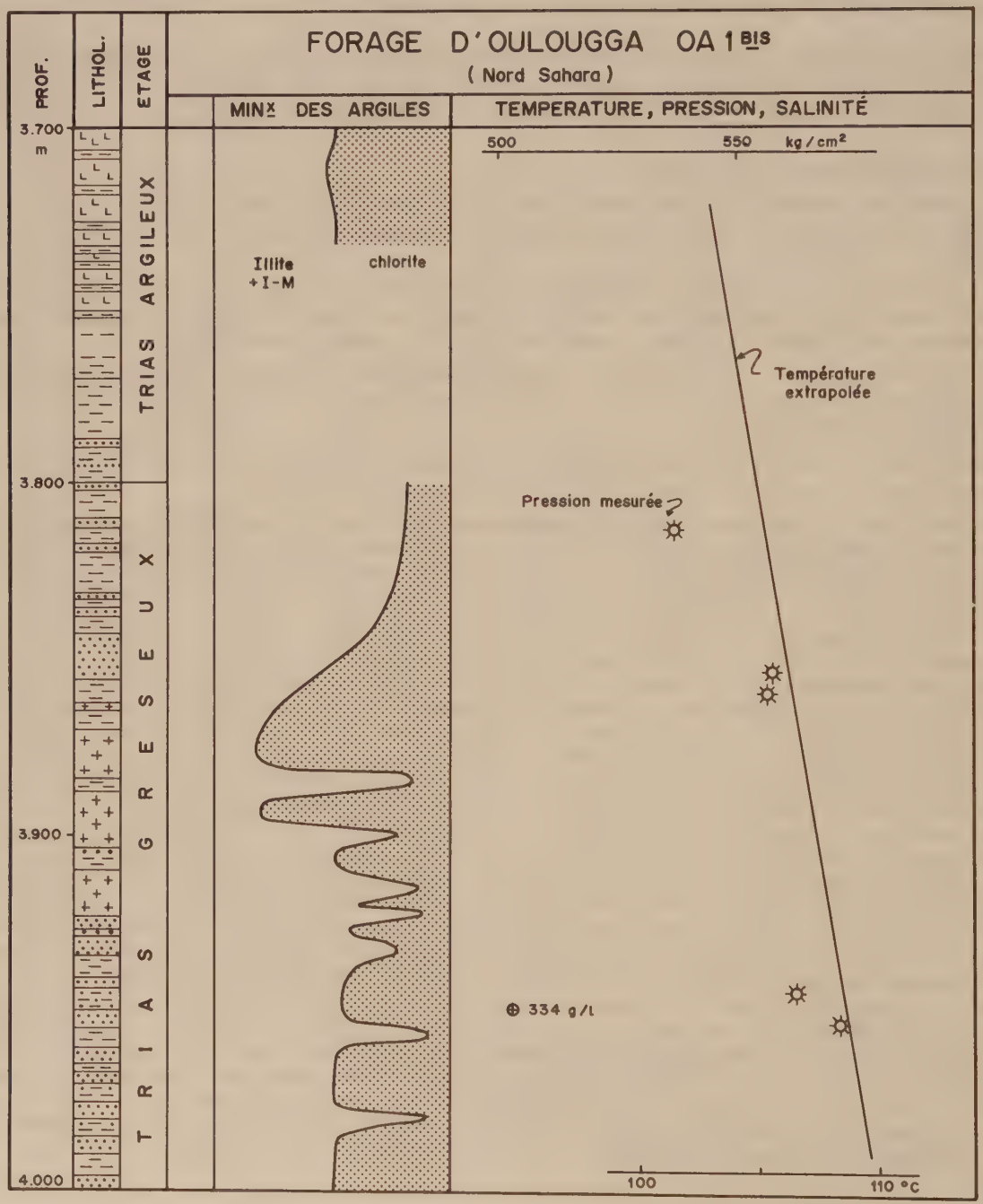


Fig. 42 - Forage d'Oulougga. Lithologie, minéralogie, gradients physiques.

II - LE FORAGE D'OULOUGGA OA 1bis

Sa situation est indiquée sur la figure 23. Le Trias gréseux y a été échantilloné entre les profondeurs de 3800 et 4000 m (fig. 42).

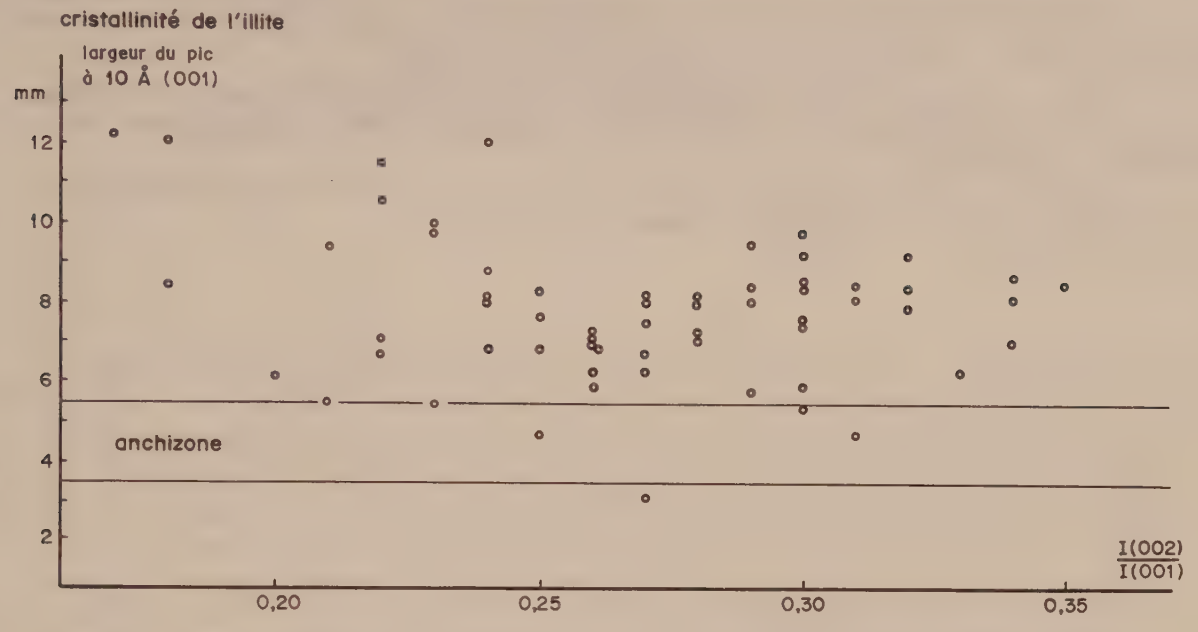


Fig. 43 - Forage d'Oulougga. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

1 - La lithologie est assez différente de celle qu'on a rencontrée à Pa 1. Les couches salifères qui surmontent immédiatement les grès sont à halite et non à anhydrite. Les grès eux-mêmes sont en bancs moins épais, séparés les uns des autres par des niveaux plus riches en argiles. Enfin la différence principale réside dans la présence de quatre sills andésitiques dont l'épaisseur totale atteint 42 m.

2 - Les minéraux argileux sont l'illite et la chlorite.

a) La chlorite intervient pour une part très variable, tout comme à Pa 1. Elle est cependant beaucoup plus abondante et peut former jusqu'à 80 % de la fraction argileuse.

b) L'illite est très semblable à celle qu'on vient de décrire dans le forage de Pa 1. La figure 44 indique une recristallisation diagénétique moyenne. Les variations de composition chimique sont moins fortes qu'à Pa 1 : I(002)/I(001) varie seulement de 0,18 à 0,35. La cristallinité est légèrement plus faible (moyenne : 7, contre 6 pour Pa 1).

3 - La diagenèse des minéraux argileux se traduit donc par une recristallisation de l'illite et de la chlorite tout comme à Pa 1. L'intensité de cette recristallisation est à peu près la même dans les deux forages, comme en témoignent les paramètres de l'illite. Quant à la présence massive de chlorite, sans doute peut-on la mettre en relation avec les manifestations volcaniques que révèlent les filon-couches d'andésite. Il est surprenant de constater que la mise en place de ces coulées andésitiques n'a eu aucun écho dans la minéralogie des illites, comme à Assejmi (voir p. 114).

III - CONCLUSIONS

Il est hasardeux de donner une vue d'ensemble des minéraux argileux dans le Trias gréseux du Sahara sur les données de deux forages. Ceux-ci apportent toutefois des indications très cohérentes qu'on peut résumer comme suit :

1 - Les seuls minéraux argileux présents sont l'illite et la chlorite.

2 - La cristallinité de l'illite indique une diagenèse assez poussée et uniforme. Le rapport d'intensité des pics à 5 et 10 Å varie de 0,2 à 0,4.

3 - Ce faciès diagénétique à illite et chlorite est attribué à une agradation des minéraux argileux sous l'effet de l'enfouissement et des circulations d'eaux salées issues des séries salifères sus-jacentes. On recoupe ici les résultats de KUBLER (1963).

4 - A Pa 1, les grès les plus massifs renferment une illite particulièrement alumineuse. On a supposé qu'elle était le produit d'agradation d'une ancienne dickite qui aurait formé le premier ciment de ces grès.

5 - A OA 1 bis, l'abondance de chlorite est sans doute en relation avec l'existence d'un volcanisme andésitique, source possible de magnésium.

CHAPITRE IV

LE FORAGE D'ASSEJMI, ASJ 1 (BASSIN DE TINDOUF, SAHARA OCCIDENTAL)

Le forage d'Assejmi a été réalisé dans le courant de l'année 1963 par la société UNIPETROL en association avec la SAFREP[1].

C'est à l'initiative du Bureau de Recherches de Pétrole (BRP) que les échantillons de ce forage ont été mis à l'étude. Il s'agissait de rechercher les traces de la diagenèse d'enfouissement dans la minéralogie des argiles. La série semblait particulièrement bien choisie puisque le Silurien et le Dévonien, épais de plus de 3000 m, y présentent un faciès argileux presque constant, et que le gradient géothermique y est très élevé (20 m).

Le forage est implanté au bord nord-est du bassin de Tindouf, vaste synéclise elliptique, allongée d'est en ouest entre deux môles : au sud le bouclier Reguibat ou dorsale mauritanienne, précambrienne, au nord la chaîne hercynienne de l'Anti-Atlas (fig. 23 et 49). On se reportera aux travaux suivants pour connaître dans ses grandes lignes l'histoire sédimentologique du bassin : GEVIN (1960), BOCHERENS et BRION (1963), PERRODON et TEISSERENC (1968). Le rapport de BOCHERENS et BRION est une mise au point très détaillée où la plupart des travaux antérieurs à 1963 sont cités et analysés.

I - LES SERIES TRAVERSEES PAR LE FORAGE

Sous la hamada, affleure le Dévonien supérieur. Le forage le traverse jusqu'à la profondeur de 1701 m. Il est constitué d'argilites feuilletées gris-foncé, à intercalations silteuses ou micacées, légèrement chargées de carbonates, de sulfates, et de pyrite. Des bancs quartzitiques de quelques mètres d'épaisseur rompent la monotonie de cette série argileuse. Mais la rupture la plus forte n'est pas d'ordre sédimentaire : il s'agit de filons doléritiques d'âge carbonifère (sills ou dykes) qui forment trois masses importantes dans la coupe du forage entre 750 et 1400 m de profondeur. La plus puissante des trois présente une épaisseur de 94 m.

Le Dévonien moyen, de 1701 à 1997 m de profondeur, est représenté par les mêmes argilites que ci-dessus dans lesquelles apparaissent quelques petits bancs calcaires. Les calcaires forment à la base un banc épais (40 m), gris foncé, zoogène, à intercalations de marnes, de siltstones et d'argiles.

Avec le Dévonien inférieur les argilites se chargent de grès fins et de siltstones et il se développe de minces passées calcaires (1997-2568 m).

Le Silurien (Gothlandien) montre encore le même faciès avec des passées silteuses plus riches en micas (2568-3044 m).

Le passage à l'Ordovicien est tranché. Ce sont des quartzites gris, compacts, et des argilites noires indurées plus ou moins silteuses. Des grès quartzitiques gris à blanc forment la base du forage.

---

(1) Je remercie les sociétés UNIPETROL et SAFREP d'avoir mis à ma disposition les échantillons de ce forage.

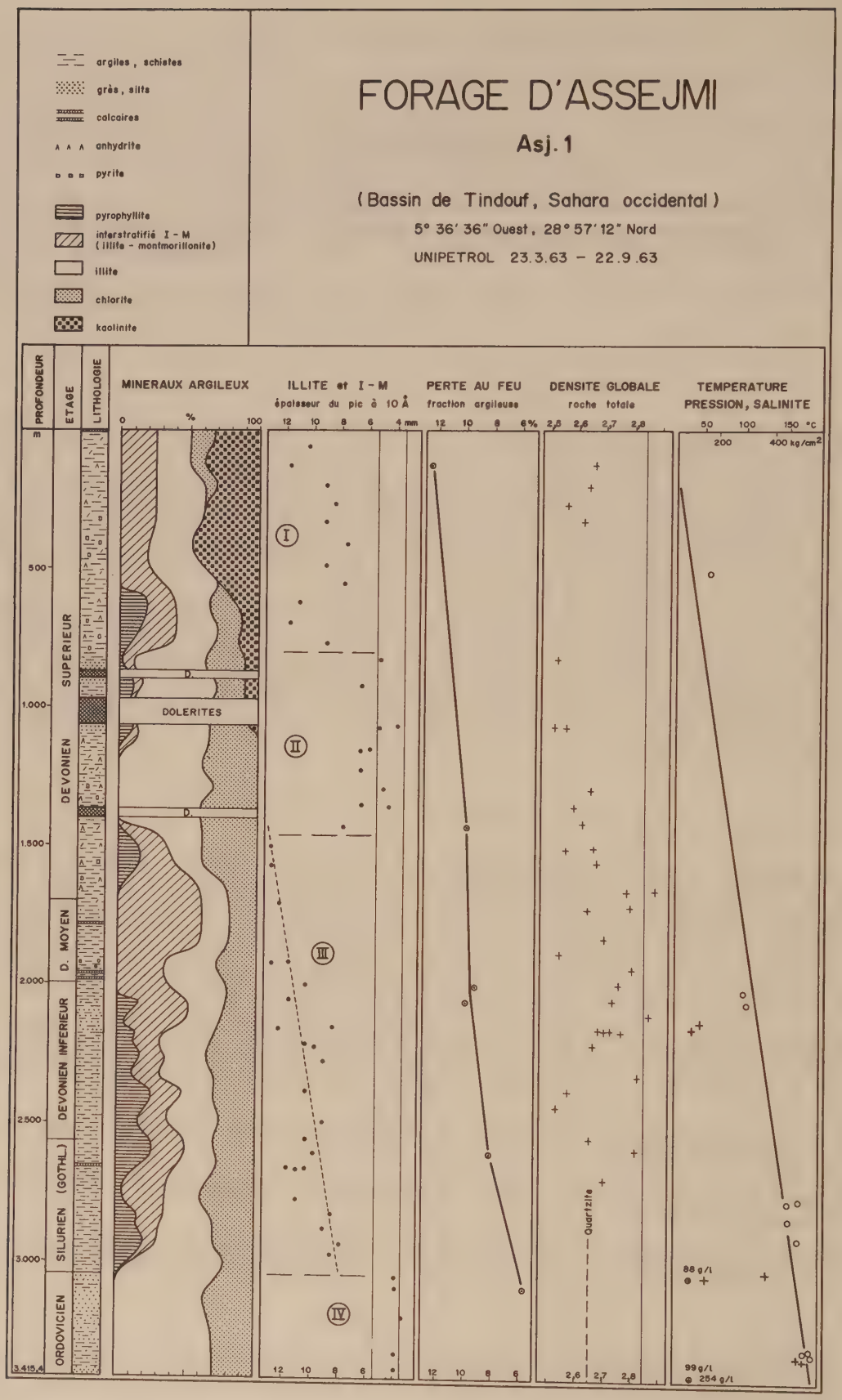


Fig. 44 - Forage d'Assejmi. Données lithologiques, minéralogiques et physiques.

II - LES GRADIENTS PHYSIQUES

1 - Température

Les mesures en cours de forage ont été reportées sur la figure 44. Elles indiquent un gradient géothermique élevé de 5°C pour 100 m, soit un "degré géothermique" de 20 m.

2 - Pression

La pression des fluides a été mesurée dans les parties profondes du forage (fig. 44). Elle atteint 496 kg/cm^2 à 3410 m et 507 à 3414 m.

3 - Compaction des argiles

Les mesures de densité globale des roches donnent une idée de la compaction entre 1000 et 2000 m de profondeur. Les densités atteignant et dépassent 2,8 ce qui permet de penser que la porosité est extrêmement faible.

Au-dessous de 2000 m, à partir du Dévonien inférieur, l'importance croissante prise par les grès et les silts apporte une grande dispersion dans les densités, un quartzite compact ayant une densité de 2,65, nettement inférieure à celle d'une argilite compacte.

III - LES GRADIENTS MINERALOGIQUES

Les résultats de l'analyse de la fraction argileuse ont été traduits graphiquement (fig. 44). Cinq types minéralogiques sont présents. Je les décrirai successivement.

1 - La pyrophyllite (Planche I, photo 4)

Elle ne constitue jamais l'élément majeur de la fraction argileuse mais peut atteindre jusqu'à 25 % (fig. 44). Elle apparaît en deux épisodes. C'est d'abord le Dévonien supérieur où sa présence est discontinue. On l'observe presque toujours à l'état de traces dans les zones notées comme sans pyrophyllite sur la figure 44. Absente dans le Dévonien moyen, on la retrouve dans le Dévonien inférieur et le Gothlandien, de façon continue cette fois. On verra plus loin que ces étages sont ceux où la pyrophyllite se développe particulièrement bien, tant dans le domaine saharien qu'à l'échelle de l'Europe occidentale. Avec l'Ordovicien la pyrophyllite disparaît complètement.

2 - L'illite et les interstratifiés illite-montmorillonite

Cet ensemble s'étend sur quatre zones dont les limites sont très nettes (fig. 44). Elles ont pu être déterminées en mesurant l'épaisseur du pic complexe à 10-12 Å à mi-hauteur. On apprécie de cette manière le degré d'interstratification de l'illite.

La zone I se caractérise par une proportion importante de feuillets gonflants, donnant des épaisseurs de 7 à 12 mm. L'interstratifié présente un pic effilé à 10,8 Å offrant une surstructure à 22 passant à 26 au glycol.

Dans la zone II, les interstratifiés illite-montmorillonite disparaissent pratiquement. L'illite demeure et sa cristallinité est élevée. L'épaisseur du pic la situe dans l'anchizone. Le faciès anchizonal à illite et chlorite est d'ailleurs atteint sur une épaisseur de 200 mètres. On peut voir là l'effet d'une sorte de métamorphisme de contact dû aux intrusions doléritiques carbonifères. Celles-ci constituent des masses magmatiques importantes (94 m d'épaisseur pour l'une d'elles). Insuffisantes pour provoquer un véritable métamorphisme à cornéennes, elles ont pu induire des changements minéralogiques subtils, invisibles au microscope, comme la fermeture des feuillets d'illite. Notons que ces agradations sont surtout bien marquées entre 1200 et 1400 m. Il est possible qu'un dyke doléritique non traversé par le forage passe à proximité de cette zone. Il n'y a là aucune preuve décisive de l'action thermique des intrusions doléritiques ; mais si ces dernières n'étaient pas en cause, il faudrait admettre dans la figure 44 de bien curieuses coïncidences.

Avec la zone III on s'éloigne des dolérites et les interstratifiés illite-montmorillonite se développent largement. Ils dominent entre 1600 et 1900 m. Ils demeurent ensuite constants en quantité jusqu'à la base du Silurien où ils disparaissent brusquement. Qualitativement, le pourcentage d'interfoliaires gonflants tend à diminuer, ce que traduit la diminution d'épaisseur du pic à 10 Å. Tout comme dans la zone I, mais de façon plus constante ces minéraux interstratifiés tendent à une certaine régularité.

Des saturations au potassium et au magnésium ont été faites pour mieux caractériser ces interstratifiés. Les résultats se résument ainsi :

1) Echantillons non traités.

Normal : 10,7 à 12,3 et 22 à 24 Å
Glycolé : 28 à 29 Å
Chauffé : 10 Å

2) Echantillons saturés K^+

Normal : 11,5 et 23 Å
Glycolé : 14,1 et 26 Å
Chauffé : 10 Å

3) Echantillons saturés Mg^{+2}

Normal : 12,5 et 25 Å
Glycolè : 14,5 et 28 Å
Chauffé : 10 Å

Le pic à 28 Å de l'échantillon saturé au magnésium présente la série de ses harmoniques : 002 (14,5), 003 (9,0), 004 (6,7), 005 (5,4 Å) (fig. 45). C'est donc un interstratifié régulier. Son comportement est très voisin de celui de l'allevardite (CAILLÈRE, MATHIEU-SICAUD et HENIN, 1950; BRINDLEY, 1956). Il se développe particulièrement bien vers la profondeur de 2000 m pour une température de 110°C.

Le développement d'interstratifiés illite-montmorillonite semble se faire assez régulièrement dans une certaine zone de la diagenèse d'enfouissement, où cet édifice correspond à un stade d'équilibre dans la déshydratation des minéraux argileux. Selon ESQUEVIN (communication) la structure de l'allevardite a été souvent identifiée dans le minéraux argileux des forages profonds étudiés au Centre de Recherches de Pau (S.N.P.A.).

La zone IV, enfin, se situe sous une limite sédimentologique importante. L'Ordovicien, gréseux, a une fraction argileuse à illite et chlorite très cristallines. On a déjà vu (p. 97) que ce faciès minéralogique doit être attribué, non pas à un métamorphisme ni même à une diagenèse d'enfouissement, mais bien plutôt aux conditions climatiques qui ont présidé au dépôt lui-même. A l'Ordovicien le climat périglaciaire n'a provoqué qu'une simple fragmentation mécanique des minéraux du socle, sans aucune altération chimique.(1)

L'étude de certains paramètres de l'illite a été faite selon la méthode d'ESQUEVIN (1969). La figure 46 présente un groupement des valeurs par ordre stratigraphique. Les observations suivantes peuvent être faites.

- La zone des filons doléritiques se signale par une cristallinité plus élevée (pic moins large).

- Les trois niveaux du Dévonien supérieur et moyen, du Dévonien inférieur et du Silurien ont des cristallinités semblables, mais des rapports I(002)/I(001) légèrement décalés. Cela exprime des constitutions chimiques statistiquement différentes ou bien des degrés divers d'évolution diagénétique.

- L'Ordovicien a une cristallinité élevée, puisque les illites sont directement issues des micas du socle sans altération chimique importante.

- Les cristallinités élevées s'observent pour les minéraux dont le rapport I(002)/I(001) est supérieur à 0,26.

3 - La chlorite forme un fond continu. La stabilité au chauffage est assez bonne dans toute la série.

---

(1) Voir note p. 119

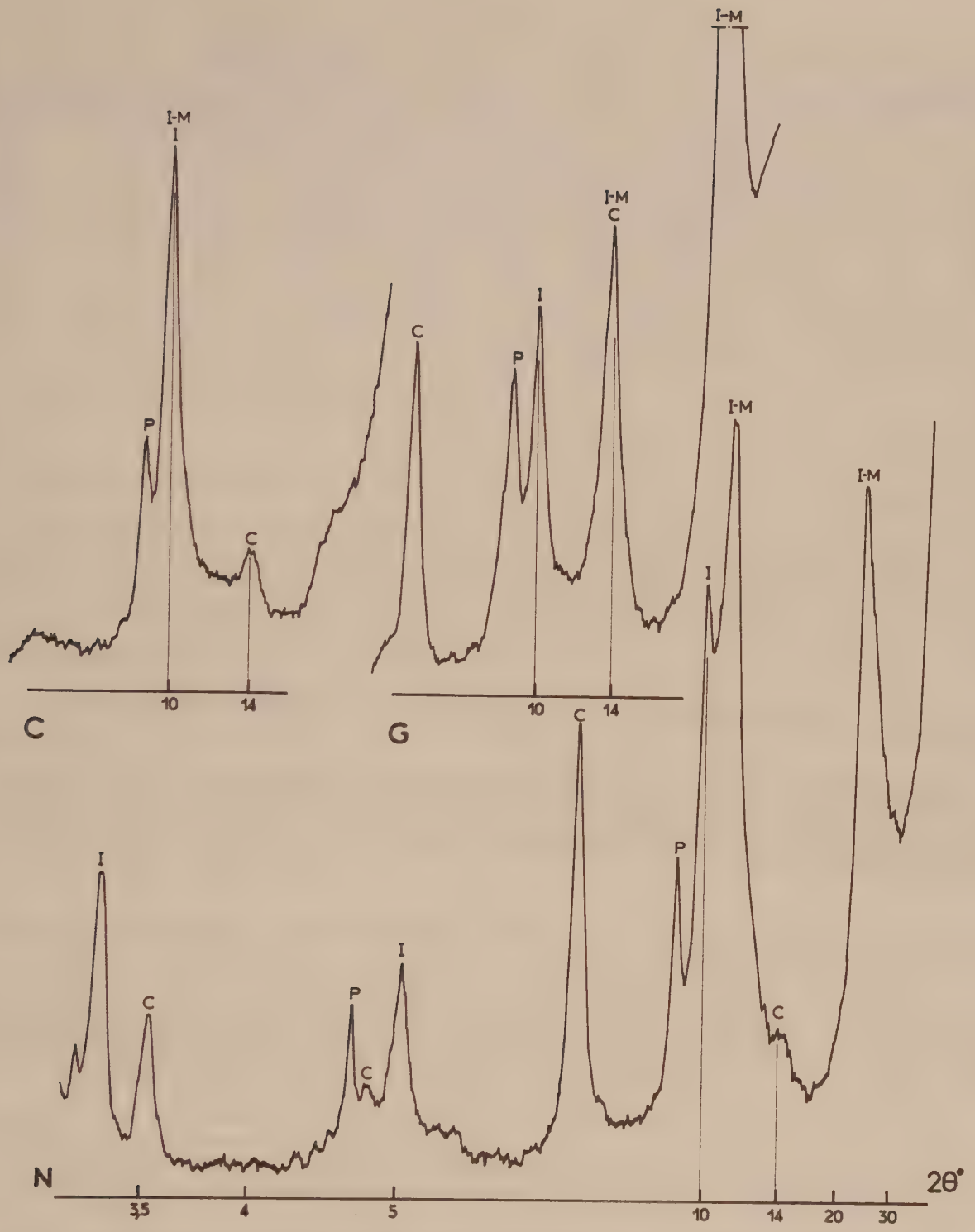


Fig. 45 - Forage d'Assejmi. Association minéralogique caractéristique du sommet du Dévonien inférieur. Profondeur : 2059,5 m.

I-M : interstratifié illite-montmorillonite, C : chlorite, I : illite, P : pyrophyllite.

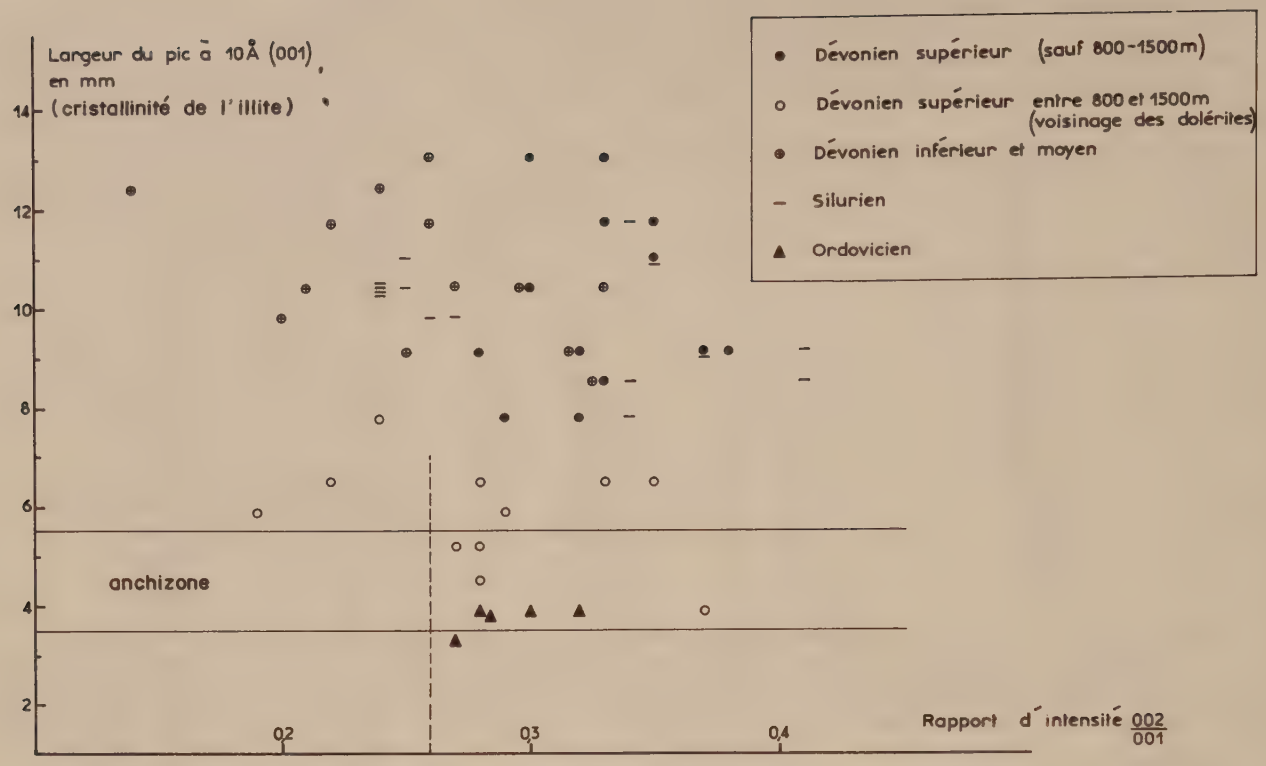


Fig. 46 - Forage d'Assejmi. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

4 - La kaolinite, importante au sommet du Dévonien supérieur, décroît rapidement pour s'annuler à 1100 m de profondeur, à une température de 67°C. Les intrusions doléritiques ne sont sans doute pas étrangères à cette disparition soudaine et totale dans des conditions de température actuelles relativement faibles.

IV - LES GRADIENTS CHIMIQUES

Le résultat des analyses chimiques figure sur le tableau XVI.

Les chiffres ci-dessous n'indiquent aucune teneur anormale. La fraction fine a une composition très voisine de celle de la roche totale, puisque celle-ci est essentiellement argileuse. On note cependant, pour la fraction inférieure à 2µ, une teneur en silice légèrement plus faible (absence du quartz) et un enrichissement notable en alumine et en potasse (argiles illitiques).

Le seul gradient régulier est la diminution de la perte au feu à 1000°C (fig. 44). Il témoigne de la disparition de la kaolinite riche en OH, d'abord, et ensuite du réarrangement des interstratifiés illite-montmorillonite, qui tendent à se rapprocher de l'illite. Le dernier échantillon, pris dans l'Ordovicien, marque un saut dans cette évolution avec une teneur élevée en potassium et une faible teneur en eau.

Citons enfin une donnée géochimique de forage, la salinité des eaux profondes, qui est de 88‰ à 3045 m de profondeur, de 99‰ à 3403 m, et de 244 ‰ à 3384 m (fig. 44).

Tableau XVI

ASSEJMI. Analyse chimique des éléments majeurs

Profondeur	129 m		1431 m		2007 m		2059 m		2606 m		3090 m	
	r.t.	< 2 µ	r.t.	< 2 µ	r.t.	< 2 µ	r.t.	< 2 µ	r.t.	< 2 µ	r.t.	< 2 µ
SiO_2	46,1	48,2	50,0	41,6	67,4	46,3	57,3	44,8	52,2	51,2	64,3	58,1
Al_2O_3	25,0	25,2	24,5	33,4	15,5	34,0	22,4	35,7	25,6	23,4	15,2	20,2
Fe_2O_3	8,93	8,0	7,43	4,87	3,72	2,54	5,41	2,34	7,65	8,00	7,58	6,78
Mn_3O_4	0,051	0,037	0,051	0,030	0,041	0,018	0,028	0,013	0,063	0,067	0,060	0,043
Mg	1,56	1,34	2,30	1,90	0,73	0,70	0,84	0,65	1,32	1,30	1,40	1,63
CaO	0,66	0,26	4,04	1,85	1,18	0,54	1,02	0,50	0,87	1,10	0,28	0,20
Na_2O	0,60	0,57	1,10	1,12	0,76	1,30	0,92	1,30	0,68	0,81	0,70	0,54
K_2O	2,89	6,82	3,00	4,07	2,55	5,15	2,83	5,00	2,61	3,42	3,84	6,09
TiO_2	0,95	0,91	1,02	0,82	1,30	0,94	1,49	0,47	1,25	1,12	0,74	1,02
P.F.	12,5	11,9	8,2	9,9	5,7	9,2	7,5	9,9	7,8	8,1	5,2	5,7
Total	99,2	103,2	101,6	99,6	98,9	100,6	99,8	100,7	100,0	98,5	99,3	100,3

r.t. = roche totale <2 µ = fraction <2 µ P.F. = perte au feu à 1000°C
Les chiffres expriment les poids d'oxyde pour 100 g de roche.

RESUME DE L'ETUDE DU FORAGE D'ASSEJMI

L'ensemble de cette série siluro-dévonienne a été enfoui depuis le moment de son dépôt et soumis à des conditions de température et de pression assez sévères. L'étude minéralogique et chimique des argiles a révélé certains traits, qu'on peut sans doute attribuer à la diagenèse d'enfouissement. D'autres traits lui sont étrangers. Je rappellerai brièvement les uns et les autres.

1 - Résultats de la diagenèse d'enfouissement

- disparition de la kaolinite

- développement massif d'interstratifié illite-montmorillonite sub-régulier de type allevardite dans la partie moyenne du forage

- régression de l'interstratifié vers la base de la série par passage à une illite de plus en plus fermée

- diminution de la perte au feu des argiles de 12 à 6 %

- néoformation de pyrophyllite

2 - Variations minéralogiques indépendantes de la diagenèse

- effet thermique des intrusions doléritiques carbonifères : disparition de la kaolinite et des feuillets gonflants, recristallisation de l'illite

- association minéralogique particulière à l'Ordovicien en relation avec des conditions climatiques périglaciaires de l'Ordovicien : illite et chlorite à forte cristallinité. (1)

---

(1) Note ajoutée en cours d'impression : de nouveaux résultats (CHENNAUX, DUNOYER et PETRACCO, 1970) indiquent que l'Ordovicien d'Assejmi appartient surtout aux unités II et III antéglaciaires. En outre, l'étude des paragenèses minérales (illite, allevardite, pyrophyllite, rutile, chloritoïde) et de la réflectance des charbons met en évidence un métamorphisme anchizonal dans tout l'ouest saharien. Ce métamorphisme se fait plus intense d'est en ouest, depuis le Grand Erg Occidental vers le bassin de Tindouf, comme le montre la disparition plus ou moins précoce de la kaolinite, la valeur des cristallinités de l'illite et la teneur en rutile. Il peut s'observer dans le bassin de Tindouf, le bassin de Tarfaya, la bordure ouest de l'Erg Occidental, l'Ougarta et l'Ahnet. Une telle répartition coïncide, à grande échelle, avec les aires qui furent, au Sahara, affectées par l'orogenèse hercynienne (FABRE, 1969).

CHAPITRE V

LE FORAGE D'ADRAR ZOUGAR (ANTI ATLAS MAROCAIN)

Ce forage a été exécuté en 1963-1964 par la Société PETROFINA et le Bureau de Recherches et de Participations Minières du Maroc (BRPM)[1] dans la partie méridionale de l'Anti-Atlas par 8° 30' de longitude ouest et 29° 0' de latitude nord (fig. 23). Il fut implanté sur un de ces dômes ou brachyanticlinaux qui s'élèvent dans la plaine du Dra, au large du Jebel Bani. Pour plus de précisions sur le cadre géologique on se reportera aux travaux de CHOUBERT (1952, 1963). On y trouvera une description stratigraphique détaillée des séries traversées par ce forage, séries dont les principaux termes ont été mis en place sur la figure 47.

Sous les grès quartzitiques de l'Ordovicien moyen qui affleurent à l'Adrar Zougar on a rencontré les "schistes du Tachilla" (Llanvirn) puis les "schistes de Fezouata" (Tremadoc-Arenig) dans lesquels commence ici l'échantillonnage. Ce sont des pélites argilo-gréseuses, gris foncé, rubannées, très compactes, cimentées par de l'illite, de la chlorite et du quartz.

Vient ensuite le Cambrien moyen, sur 500 m, comportant un terme inférieur schisteux à Paradoxides et un terme supérieur les "grès du Tabanit" à Conocoryphe et Lingula. Le Cambrien inférieur ou Géorgien, à Archaeocyathidés est une série négative, calcaire à la base, gréseuse au sommet, épaisse ici de 850 m. Les échantillons étudiés sont des pélites argilo-micacées gris clair, comprenant à la base de minces lits gréseux roses à anhydrite et gypse.

L'Adoudounien est une formation intermédiaire, légèrement discordante sur le Précambrien P III, mais pratiquement concordante avec le Paléozoïque. C'est donc un "Infracambrien". Il est représenté ici par une série dite "lie de vin", de 350 m de puissance, faite de grès et pélites gris clair à violacé, puis par une "série des calcaires inférieurs", épaisse de 410 m, où s'observent en fait des niveaux dolomitiques gris foncé.

Vers 3300 m de profondeur le forage est entré dans des séricitoschistes assez cristallins, à schistosité oblique très nette, puis s'est arrêté à 3400 m dans un faciès qu'on peut rapporter à une roche éruptive basique très altérée où tous les éléments ferromagnésiens sont chloritisés. On rapporte ces formations au Précambrien supérieur P III.

Signalons ici que les échantillons du P III et de l'Adoudounien sont riches en une chlorite qui cristallise dans des filonnets ou des "yeux" avec quartz, anhydrite et calcite. Cette chlorite évidemment post-sédimentaire plaide en faveur d'une action de type métamorphique ou hydrothermal. Elle n'est pas comprise dans les minéraux argileux dont la figure 47 fait état, puisque sa taille est largement supérieure à 2 μ, limite granulométrique choisie pour définir le groupe des "argiles".

I - LES MINERAUX ARGILEUX

Le log minéralogique fait apparaître une grande monotonie dans la population des minéraux argileux. Mis à part les deux niveaux à pyrophyllite entre 2500 et 3000 m, on ne rencontre que

---

(1) Je remercie ces organismes d'avoir bien voulu me confier des échantillons pour étude et autoriser la publication des résultats.

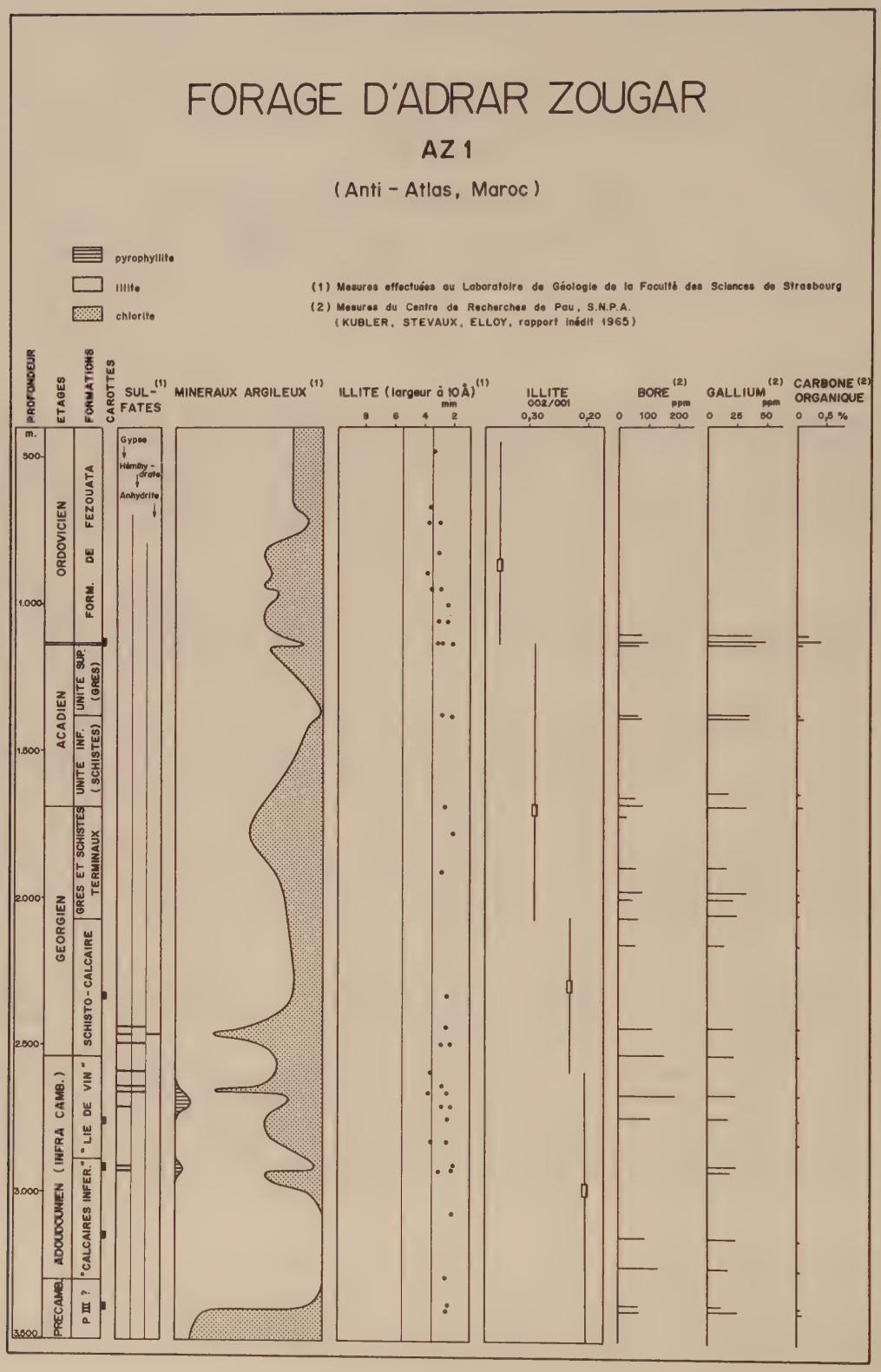


Fig. 47 - Forage d'Adrar Zougar. Analyses minéralogiques et géochimiques.

l'illite et la chlorite. Mais les proportions de ces deux minéraux sont très variables d'un niveau à l'autre. Il est même vraisemblable que cette variation est importante à l'échelle métrique ou décimétrique, témoignant des changements de composition chimique d'un lit à l'autre. Les oscilations que présente la figure 47 sont donc tout à fait factices. Un échantillonnage plus serré aurait sûrement fait apparaître un schéma différent. Ce qu'il importe de retenir, c'est que chlorite et illite sont seuls présentes, avec la pyrophyllite.

1 - L'illite

Il s'agit d'une illite bien cristallisée qui s'inscrit à la base de l'anchizone pour l'Ordovicien, et gagne franchement le domaine métamorphique dans le Cambrien et l'Antécambrien (fig. 47).

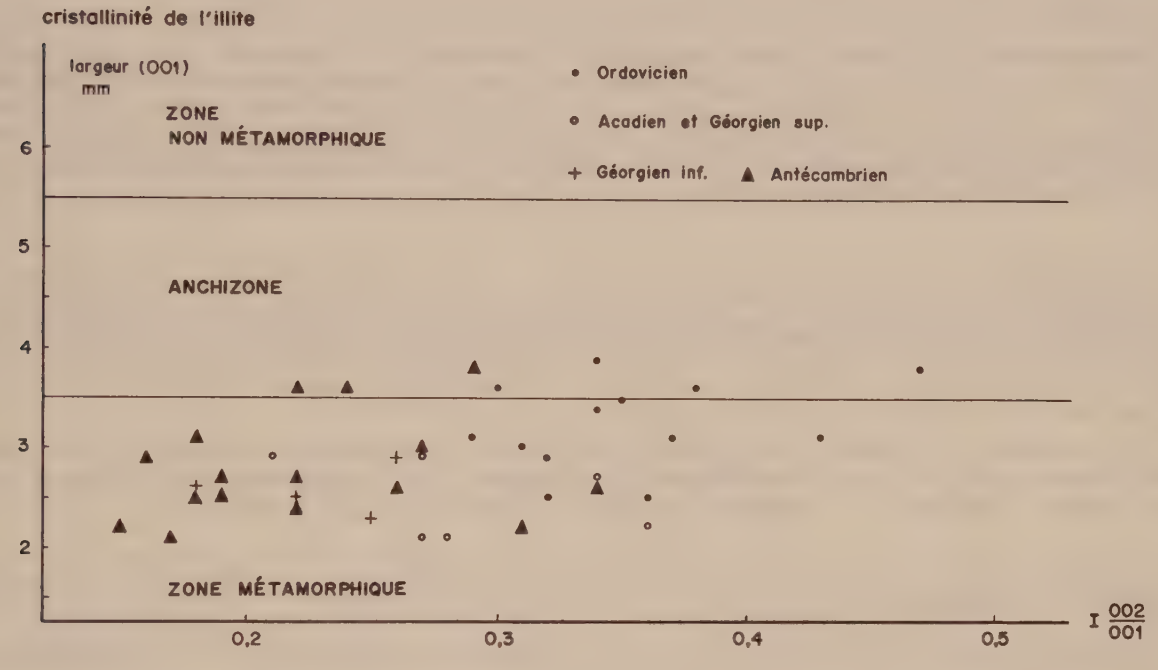


Fig. 48 - Forage d'Adrar Zougar. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

L'analyse de certains paramètres selon la méthode d'ESQUEVIN (1969) est donnée sur la figure 48. Outre la légère diminution d'épaisseur du pic à 10 Å à la base de l'Ordovicien, bien visible sur la figure 47, il faut noter une variation progressive à travers toute la série du rapport I(002)/I(001) reportée également sur la figure 47. Le tableau suivant en donne les valeurs.

Tableau XVII

ADRAR ZOUGAR. Variation de certains paramètres de l'illite le long du forage

Etages	largeur pic 10 Å en mm	rapport d'intensité des pics I(002)/I(001)
Ordovicien	3,2	0,35
Acadien + Géorgien sup.	2,5	0,29
Géorgien inf.	2,6	0,23
Antécambrien (Adoudounien + P III)	2,7	0,21

Il apparaît une diminution avec la profondeur du pic 002, à 5 Å, qui dénote le caractère de plus en plus trioctaédrique des micas. Il ne faut pas en conclure qu'on assiste à la naissance de biotite sous l'action d'un métamorphisme croissant, la biotite ayant un rapport I(002)/I(001) franchement inférieur à 0,15. Tout au plus s'agit-il de solutions solides biotite-muscovite, ou de micas magnésiens de la famille des phengites. Le métamorphisme exerce d'ailleurs parfois l'effet inverse, conduisant les illites, partiellement ferriques et magnésiennes, à des types de plus en plus alumineux.

Pour interpréter une telle variation, on pense à un changement de milieu géochimique : variation de la chimie originelle des sédiments, ou bien variation par diagenèse des solutions interstitielles. Faute de mesures on ne peut s'engager plus avant dans l'interprétation et, en particulier, faire un choix entre ces deux hypothèses.

2 - La chlorite

L'espacement basal moyen, mesuré sur (004), est de 14,2 Å. Il s'agirait donc, selon BRINDLEY (1961), de chlorite banale où la substitution d'aluminium dans les tétraèdres serait $(Si_{2,3}Al_{1,7})$. La stabilité au chauffage est assez faible, même pour les raies d'ordre impair, mais aucun tassement partiel entre 14 et 10 Å ne s'observe. Le Précambrien est très riche en une chlorite bien cristallisée, très stable au chauffage, à 14,2 Å également. Elle correspond à des conditions de genèse particulières de type hydrothermal.

3 - La pyrophyllite

Elle apparaît à deux reprises, dans la formation "lie de vin" d'abord, puis au sommet de l'Adoudounien. Sa présence est discrète (10 % environ) mais sa caractérisation se fait sans difficultés par ses raies (001) à 9,16, 4,58 et 3,05 Å bien isolées. Un examen superficiel des diagrammes peut entraîner des confusions avec le talc ou des zéolites vers 9 Å d'une part, et avec la calcite vers 3 Å.

Les conditions de gisement de la pyrophyllite seront envisagées plus loin dans un cadre plus général. Bornons nous ici à faire remarquer la coïncidence de la pyrophyllite et des sulfates de calcium, gypse, hémihydrate et anhydrite, qui sera un des éléments de discussion.

II - DONNEES GEOCHIMIQUES

Un certain nombre de mesures ont été faites au Centre de Recherches de Pau (SNPA) par KUBLER, STEVAUX et ELLOY (rapport inédit 1965)[1].

Parmi les nombreux éléments en trace dosés, le bore et le gallium offrent des chiffres interprétables (fig. 47). Les faibles teneurs en bore dans la fraction argileuse (100 ppm en moyenne) indiquent une influence continentale et s'expliquent par la grande richesse en éléments détritiques de toute la série. Elles confirment cependant le caractère marin de l'ensemble, souligné par des teneurs relativement faibles en gallium. La corrélation négative classique bore-gallium est observable, en particulier à la base de l'Ordovicien et au sommet de l'Adoudounien.

Les teneurs en carbone organique total ont été données à titre indicatif, pour montrer leur valeur constamment faible qui interdit toute recherche sur la composition détaillée des hydrocarbures. Le forage a montré de faibles indices de gaz composé de méthane à 99 %.

Les niveaux aquifères rencontrés ont fourni de l'eau d'abord douce, puis à salinité croissante jusqu'à 180 g/litre.

Le degré géothermique était de 24 m (101°C à 3395 m de profondeur).

---

(1) Je remercie la Société Nationale des Pétroles d'Aquitaine (SNPA) de bien vouloir m'autoriser à faire état de ces résultats.

III - DISCUSSION

La série paléozoïque inférieure traversée par le forage d'Adrar Zougar a subi une évolution diagénétique très poussée, touchant au métamorphisme. Nous rappelons les principaux éléments de cette évolution.

- La compaction et la cimentation des roches est totale. Il s'agit bien d'une compaction postsédimentaire car les mêmes niveaux, ceux du Cambrien par exemple, dans la partie sud du bassin de Tindouf, où leurs conditions d'évolution ont été toutes différentes, ont une porosité matricielle atteignant 20 %.

- Les seuls indices d'hydrocarbures sont constitués de méthane, qui peut témoigner de phénomènes de craquage au cours d'une période d'élévation thermique.

- Les minéraux argileux sont partout l'illite et la chlorite, minéraux constants des zones inférieures de la diagenèse. L'illite y présente une variation importante et régulière dans sa constitution chimique, dont l'origine diagénétique n'est d'ailleurs pas certaine. La présence de pyrophyllite indique des conditions thermodynamiques qui sont celles de la diagenèse profonde et de l'hydrothermalisme. Son association à des sels, sels de calcium en particulier, est significative.

Les caractères presque métamorphiques offerts par cette série ne peuvent s'expliquer en fonction des conditions actuelles puisque la température dépasse à peine 100°C au fond. Il faut chercher des éléments d'explication dans l'histoire géologique. Il s'en offre trois.

1 - La diagenèse d'enfouissement

Avant le plissement hercynien et l'érosion qui l'a suivi, le Paléozoïque inférieur était recouvert par une série très épaisse. On peut l'estimer à Adrar Zougar, selon SCHAER (communication) à

800 m pour le Caradoc
1000 m pour le Silurien
4000 m pour le Dévonien
2000 m pour le Dinantien

soit 7800 m auxquels s'ajoute éventuellement du Carbonifère supérieur continental. Ce recouvrement d'environ 8000 m peut représenter une température au fond de 250°C environ. Il est certain qu'une telle température peut induire des transformations minéralogiques conduisant à une illite très cristalline. Sans avoir d'exemple d'une évolution semblable, l'extrapolation de données comme celles des forages de Logbaba permet de penser qu'une simple diagenèse d'enfouissement peut être en cause ici.

2 - Le métamorphisme hercynien

Si son action légère et lointaine s'est exercée, elle n'a rien fait d'autre que de s'ajouter à l'action de la diagenèse d'enfouissement sans qu'on puisse faire la part des deux. Il faut cependant remarquer que le niveau de cristallinité atteint par l'illite dans l'Adoudounien est le même que celui atteint dans le Précambrien qui a peut être subi une première histoire métamorphique.

3 - Les intrusions doléritiques

Des dykes et des sills de dolérites sillonnent le Paléozoïque des plaines du Dra et du Zemoul. Ils sont attribués au Carbonifère. Aucun d'eux n'a été traversé par le forage, mais l'un d'eux affleure à 3 km de là, au milieu des quartzites ordoviciens, apparaissant en creux dans la topographie. Son épaisseur n'excède guère une vingtaine de mètres. Il nous semble peu probable que ces venues magmatiques aient pu créer des conditions thermiques suffisantes pour provoquer les recristallisations que nous avons décrites. On sait que leur rôle de plaque chauffante se limite aux épontes du filon. Mais, en revanche, la concordance observée dans le bassin de Tindouf entre dolérites et cristallinité de l'illite (fig. 44) mérite qu'on s'arrête à cette hypothèse.

Le forage d'Adrar Zougar nous offre donc l'exemple d'une évolution diagénétique très poussée touchant au métamorphisme, se traduisant dans la compaction, la minéralogie des argiles et la concentration des solutions interstitielles. Un enfouissement important semble en être la cause principale, encore que les phénomènes métamorphiques et magmatiques liés à l'orogenèse hercynienne n'y soient peut-être pas étrangers.

CHAPITRE VI

LE SILURO-DEVONIEN A PYROPHYLLITE AU SAHARA

I - INTRODUCTION

L'étude systématique de la minéralogie des argiles dans un grand nombre de formations paléozoïques au Sahara a permis de rencontrer souvent un minéral pratiquement inconnu jusqu'alors dans les fractions argileuses : la pyrophyllite. Il a paru intéressant de tenter une synthèse des conditions de gisement de ce minéral. Ce travail a été fait en collaboration avec G. CHENNAUX de la SN REPAL (Alger) que je veux remercier ici encore de son aide (CHENNAUX et DUNOYER, 1967). Je résumerai dans les pages qui suivent les observations que nous avons faites et les conclusions que nous avons données il y a deux ans, (1)

Au Sahara, la présence de pyrophyllite en milieu sédimentaire est signalée pour la première fois en 1954 par ROUGE (C.F.P.) dans le sondage C.F.P.A. d'El Golea (Ge 1), puis en 1961 par KULBICKI et ESQUEVIN (S.N.P.A.) dans l'Ougarta, en 1965 par DUNOYER dans le bassin de Tindouf à Naga (Ng 1) et Assejmi (Asj. 1). Enfin, elle est encore observée dans l'Ougarta et dans le sondage d'Hassi el Hamar (HA 1) par FRANÇOIS et ROUSSEAU (SN REPAL) ainsi que dans l'Ahnet (Trihatimine) par l'IFP (BEUF, BIJU-DUVAL, STEVAUX, KULBICKI, 1966).

Les observations se sont multipliées au cours des dernières années. Je présenterai d'abord la situation géographique, puis le contexte lithologique, avant de tenter une explication génétique.

II - LOCALISATION

1 - Répartition géographique et cadre structural (fig. 49)

Sur le terrain, la pyrophyllite abonde en Ougarta, dans différentes coupes situées entre Beni-Abbès, Marhouma, Ougarta et Zerhamra.

En sondage, elle est rencontrée dans le bassin de Tindouf, à Naga (Ng 1) et Assejmi (Asj 1), dans l'Erg occidental à El Golea (Ge 1), Hassi el Ahmar (HA 1) et Erg Sedra (ESa 1).

En revanche, la pyrophyllite est absente des échantillons de terrain provenant du Mouydir, du Zemmour et d'In Guezzan. Elle est également absente dans une quarantaine de sondages de l'Erg occidental et du bassin de Polignac.

La répartition géographique du minéral n'est donc pas quelconque, mais limitée à certaines régions.

L'examen de cette localisation dans un cadre structural (fig. 47) fait ressortir que la présence ou l'absence de pyrophyllite est conditionnée, en partie, par le degré d'enfouissement :

---

(1) J'adresse mes remerciements aux Sociétés CEP, CFPA, ERAP, EURAFREP, PREPA, SAFREP, SNPA et SN REPAL qui ont autorisé la publication de ces résultats.

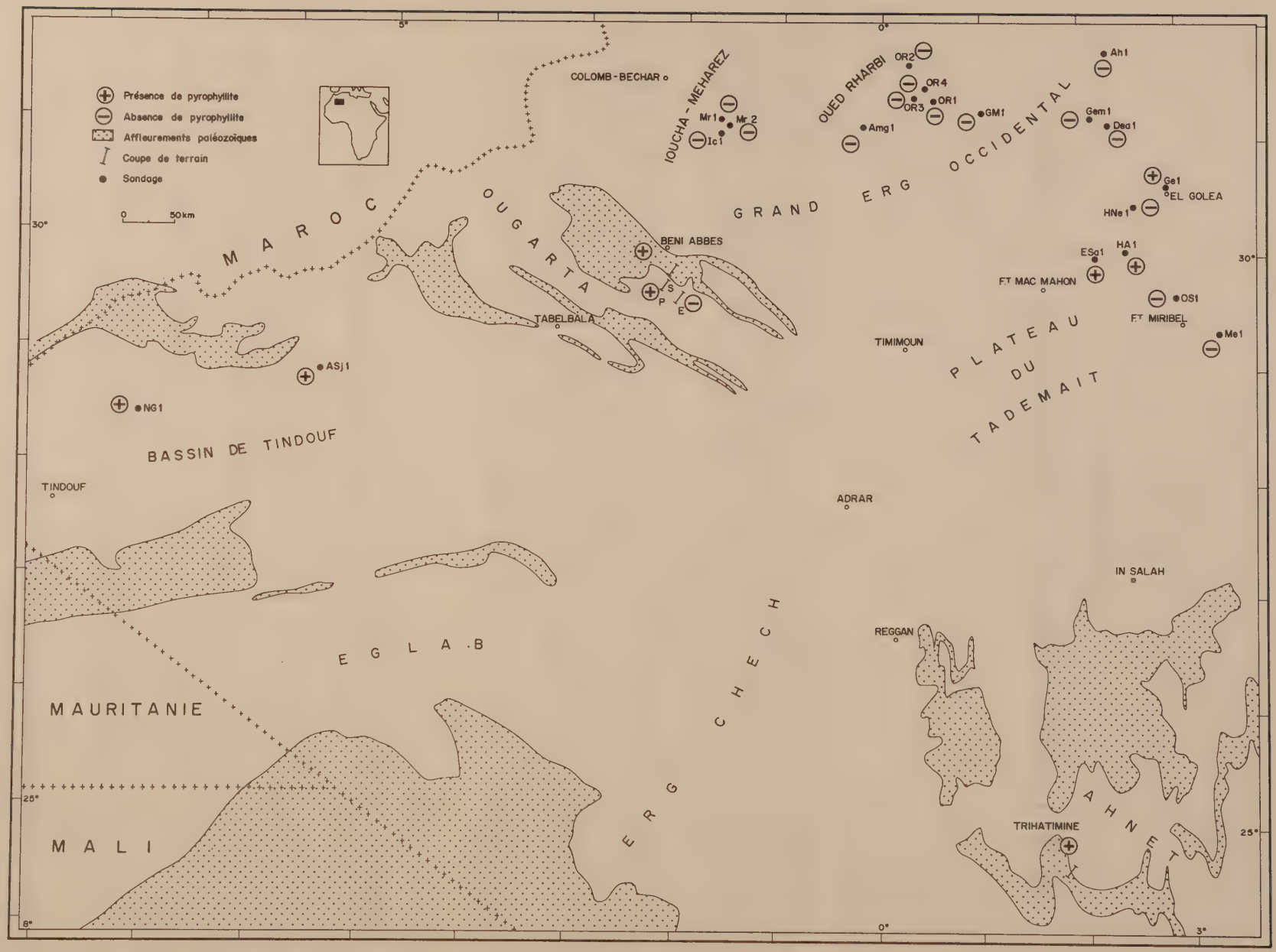


Fig. 49 - Répartition géographique de la pyrophyllite dans le Siluro-dévonien du Sahara.

- présence de pyrophyllite dans les zones profondes de Ge 1, HA 1, ESa 1, Ougarta et Tindouf ;

- absence de pyrophyllite sur les axes hauts des Hassi Nechou (HNc 1) de Miribel (Me 1) d'Oued Saret (OS 1), d'Oued Rharbi (OR 1 à OR 4), des Iouacha-Meharez (Ic 1, Mr 1, Mr 2), et de Gem 1 et Dea 1.

2 - Répartition stratigraphique

Dans le bassin de Tindouf, la pyrophyllite est présente depuis le Silurien jusqu'au Dévonien supérieur à Asj 1 ; à Ng 1 son extension observable est limitée au Dévonien moyen et supérieur, le sondage s'arrêtant dès l'entrée dans l'Emsien.

Dans l'Erg occidental, la série à pyrophyllite s'étend du Silurien au Dévonien inférieur. Sa base est bien datée par macrofaune. Les graptolites sont abondants à Ge 1 : Monograptus conis, M. tumescens, M. vulgaris, Cirtograptus simetricus (A. POUYETO). On trouve plus haut Cardiola selecta (Melle LE MAÎTRE), à Ge 1 et HA 1. Ces éléments, complétés par des données palynologiques, permettent de conclure pour ESa 1, HA 1 et Ge 1 à une extension stratigraphique allant du Ludlow au Gédinnien.

Dans l'Ougarta (fig. 50), les échantillons étudiés proviennent des formations suivantes :

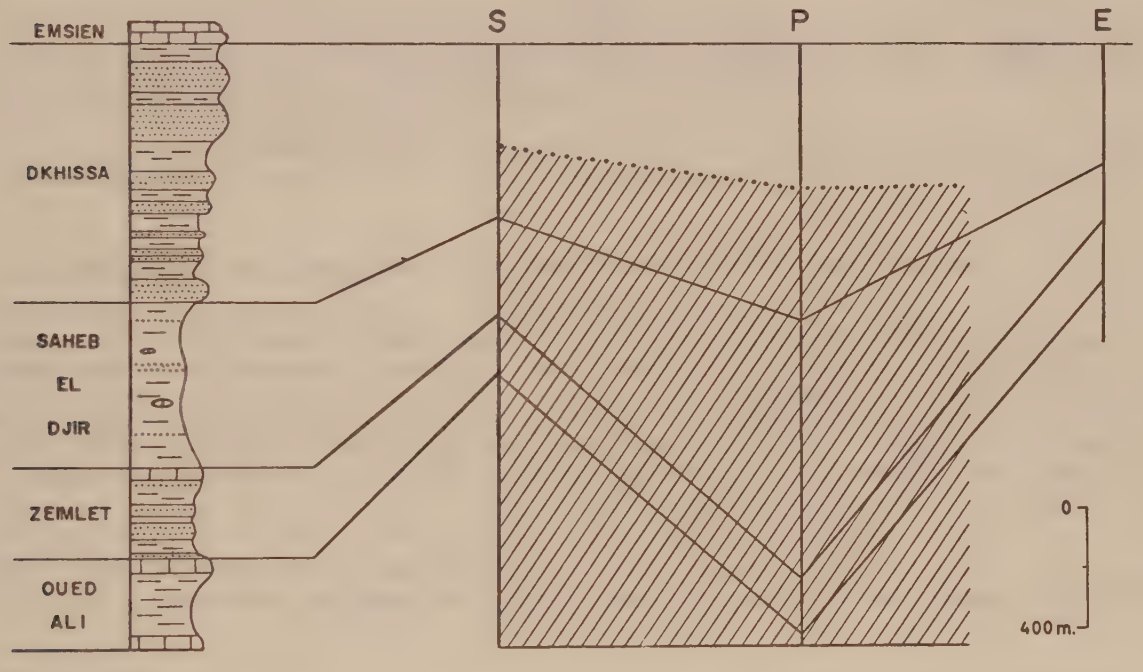


Fig. 50 - Répartition stratigraphique de la pyrophyllite en Ougarta. S, P, E : coupes de terrain situées sur la figure 49. En hachures : zone à pyrophyllite. En pointillé : toit de la pyrophyllite.

- formation d'Oued Ali, argilo-carbonatée, à Monograptus colonus et M. microdon, dont le sommet est marqué par la "dalle à Scyphocrinus" ;

- formation du Zeimlet, pélitique, à M. uniformis, M. zeimletei nov. sp. (Ph. LEGRAND) ;

- formation du Saheb el Djinn, argiles à M. hercynicus ;

- formation du Dkhissa, grès à Cleistopora geometrica surmontés par un gros banc calcaire surnommé "muraille de Chine" et attribué à l'Emsien.

En résumé, la zone à pyrophyllite présente la répartition stratigraphique suivante : elle débute avec le Silurien (Gothlandien) et se termine avec le Gédinnien dans la région d'El Golea, le Siegénien en Ougarta et le Dévonien supérieur dans le bassin de Tindouf.

3 - Puissance des formations

Dans le bassin de Tindouf, le Siluro-Dévonien à pyrophyllite représente 3000 m de série.

Dans l'Erg occidental (fig. 51), une série allant des palynozones 1 à 4 représente 790 m à ESa 1, 825 m à HA 1, 1095 m à Ge 1, tandis que la zone à pyrophyllite, oblique par rapport aux hozizons biostratigraphiques, présente respectivement 690 m, 620 m et 820 m d'épaisseur à ESa 1, HA 1 et Ge 1.

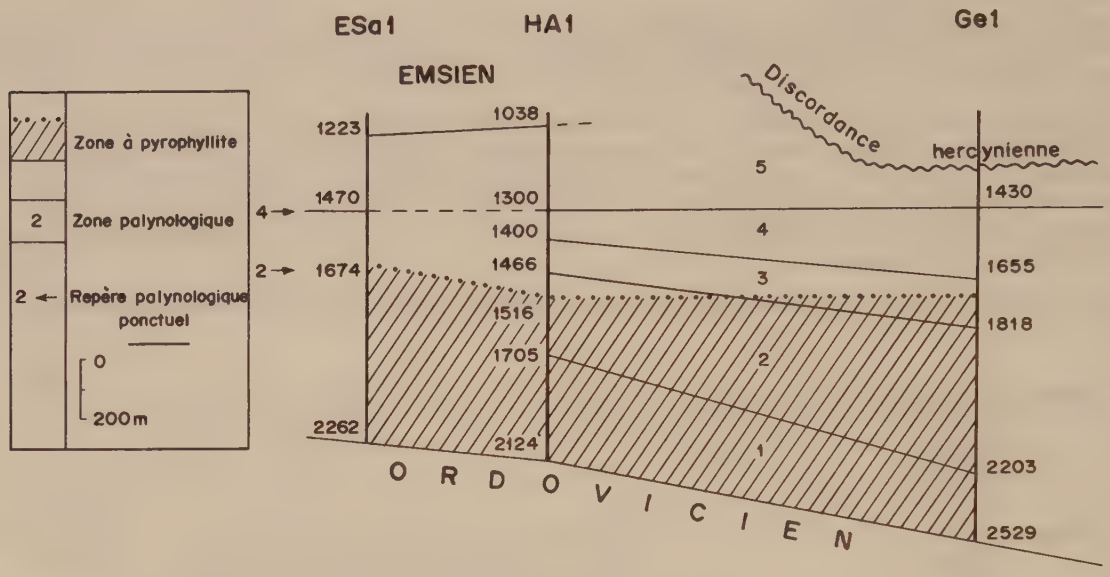


Fig. 51 - Répartition stratigraphique de la pyrophyllite en sondage dans la région d'El Golea.

En Ougarta (fig. 50) la formation gréseuse du Dkhissa présente des variations d'épaisseur rapides et importantes : coupe S, 590 m ; coupe P, 940 m ; coupe E, 400 m. Il en va de même pour le Saheb el Djinn dont l'épaisseur exacte a pu être mesurée en E (200 m) et qui s'épaissit nettement sur la coupe S et plus encore sur la coupe P. La pyrophyllite est apparemment absente dans la série réduite trouvée en E. Son abondance va croissant de S à P suivant en cela l'épaississement de la série. Le toit de la zone à pyrophyllite, oblique par rapport aux limites de formation, marque une sorte de front de subsidence.

4 - Conclusion. A l'échelle des bassins comme à l'échelle du Sahara tout entier, la zone à pyrophyllite s'élève d'autant plus dans la stratigraphie que la série est plus puissante.

III - ETUDE PETROGRAPHIQUE

Les sédiments à pyrophyllite sont peu variés : argilites et siltstones en majorité, avec accessoirement quelques passées de calcaires. Ils présentent cependant une évolution verticale constante, essentiellement liée à la clasticité, qui va croissant de bas en haut. La lithologie voit se succéder des argilites charbonneuses, des argilites micacées et très faiblement silteuses devenant progressivement de plus en plus silteuses et passant localement à des siltstones, enfin des calcaires. Il faut donc distinguer principalement cinq microfaciès à pyrophyllite (Planche I).

1 - Les argilites charbonneuses

Argilites noires, charbonneuses (traçantes), très pyriteuses, pauvres en quartz détritique, riches en dolomie automorphe (rhomboèdres de 20 μ en moyenne), avec de nombreux débris de faune. Les graptolites sont abondants dans ce faciès qui rappelle les "ampélites" du Silurien breton. Les argilites charbonneuses constituent le domaine d'élection de la pyrophyllite.

La pyrophyllite apparaît le plus souvent en épigénie de tests divers, d'encrines et de bryozoaires en particulier. Les cristaux sont alors de grande taille, optiquement très reconnaissables par leurs clivages flexueux et leurs contours arrondis. Ils évoquent des "choux-fleurs", des "houppes", des "navettes", ou des "fuseaux", termes en lesquels la pyrophyllite fut parfois décrite.

Dans ces épigénies, la pyrophyllite est étroitement associée à de la kaolinite en vermicules de grande taille. L'imbrication des deux minéraux et la continuité de leurs traits structuraux, contours et clivages, évoque plus le passage de l'un à l'autre que leur formation simultanée. On observe d'ailleurs les trois modes suivants d'épigénie : kaolinite seule, association kaolinite-pyrophyllite, pyrophyllite seule. La kaolinite seule est très nettement conditionnée par le test dont elle reflète la structure, et l'épigénie est limitée à la périphérie des tests, laissant subsister au centre des résidus carbonatés. Dans l'association kaolinite-pyrophyllite, la kaolinite est généralement interne, la pyrophyllite externe ; l'épigénie est plus complète que dans le premier cas. Enfin, l'épigénie en pyrophyllite seule est totale : la structure du test a disparu et il ne subsiste aucune trace de carbonate.

On peut donc envisager, non pas la formation simultanée des deux minéraux mais la succession dans le temps calcite ou dolomite-kaolinite-pyrophyllite par remplacement épigénique progressif.

Notons encore dans ce même faciès que :

- la pyrophyllite se développe parfois en corrodant les grains de quartz détritique ;

- les débris de tests subissent par endroits des quartzifications secondaires totales ou partielles ; aucun lien n'a été observé entre quartz, kaolinite et pyrophyllite, de sorte que la réaction quartz + kaolinite $\longrightarrow$ pyrophyllite ne peut être invoquée ;

- il se développe systématiquement une chlorite aciculaire, également néoformée, sans relation structurale avec les minéraux précédents, et particulièrement localisée dans les amas pyriteux.

2 - Les argilites silteuses micacées

Elles sont claires par rapport aux précédentes, mais contiennent souvent des traces de matière organique et de la pyrite. Elles présentent, comme les argilites charbonneuses, mais en quantité moindre, des carbonates en petits rhomboèdres.

La pyrophyllite y apparaît en remplacement des micas détritiques, abondants et de grande taille. Ces micas sont généralement très dilatés dans leur partie centrale et chloritisés.

Il existe tous les intermédiaires entre le mica, la chlorite et la pyrophyllite. Celle-ci apparaît d'abord en liserés marginaux épousant les contours du mica détritique, puis elle se développe vers son centre, de façon plus ou moins continue, laissant parfois subsister des flots micacés ou chloriteux, jusqu'à réaliser enfin une épigénie totale.

Notons que dans ce faciès, également, la pyrophyllite remplace parfois le quartz détritique.

3 - Les siltstones

Comme dans le microfaciès précédents, la pyrophyllite se développe aux dépens du quartz et du mica. En outre, de rares siltstones du sommet de l'Oued Ali renferment des cristaux automorphes de halite à l'intérieur desquels on observe généralement des paillettes argileuses évoquant de la kaolinite, tandis que la pyrophyllite se développe extérieurement sur toute la surface du cristal.

Il est certain que ce sel n'est pas le produit de percolations superficielles, puisqu'il est antérieur à la pyrophyllite, et que ce dernier minéral ne peut se former à température et pression ordinaire, dans l'état actuel des connaissances.

4 - Les argilites schisteuses

Ce sont des argilites verdâtres, à toucher soyeux, à débit très fin, qui présentent souvent un plissotement bien marqué. Elles s'oxydent et se rubéfient à l'affleurement.

Seule la pyrophyllite est optiquement déterminable dans une matrice argileuse bien litée et microplissée. Aucune trace d'épigénie n'a été observée dans ce microfaciès.

5 - Les calcaires

En Ougarta, dans les formations de l'Oued Ali et du Zeimlet, il est possible de distinguer deux types de calcaires. D'une part les calcaires microcristallins argileux, comportant, outre des graptolites bien conservées (M. colonus pour l'Oued Ali), quelques débris de tests, et d'autre part des calcaires organoclastiques qui résultent de l'accumulation d'un grand nombre de débris d'organismes, cimentés par un carbonate spathique.

La pyrophyllite est abondante dans le premier faciès, soit en épigénie de test, soit isolée dans la pâte microcristalline. Elle est absente dans le second.

Les miches calcaires de la formation du Zeimlet renferment du gypse. Il ne s'agit pas là des recristallisations actuelles ou subactuelles de gypse telles qu'on les rencontre habituellement au Sahara. Le gypse est ici associé à une phase ancienne de diagenèse puisqu'il épigénise préférentiellement des débris de test. L'antériorité du gypse par rapport à la pyrophyllite permet de conclure, comme pour le sel, à une cristallisation diagénétique relativement précoce.

IV - GENESE DE LA PYROPHYLLITE

Les faciès qui viennent d'être décrits ont un certain nombre de points communs : ils vont permettre de rechercher l'origine de cette pyrophyllite. L'extrême rareté de ce minéral dans les séries sédimentaires, en général, et sa localisation géographique et stratigraphique assez précise, dans le cas présent, plaident d'ailleurs en faveur d'un mode de formation unique et particulier. Je passerai en revue les différents arguments dont on dispose pour reconstituer cette genèse.

1 - La pyrophyllite est une néformation de la zone de diagenèse

Le caractère néoformé de la pyrophyllite ressort de l'examen des microfaciès. Cette néoformation prend trois aspects principaux :

- épigénie d'organismes calcaires, de micas détritiques ou de grains de quartz,
- développement de cristaux oeillés dans les argilites schisteuses,
- cristallisation aux bordures des cristaux d'halite.

Il est clair, d'autre part, que ces néoformations se sont produites au cours de la diagenèse, c'est-à-dire après le dépôt du sédiment. On ne peut concevoir, en effet, que les épigénies fragiles qu'on a décrites aient résisté à la trituration d'un sédiment frais où le quartz détritique est présent : c'est tout à fait impossible pour les cristaux d'halite bordés de pyrophyllite.

2 - La pyrophyllite est associée à des sels (dolomite, calcite, halite, gypse)

La pyrophyllite apparaît principalement dans des faciès à caractère mixte, chimique et détritique très fin, pélitique ou ampélitique. L'accentuation du caractère détritique, par la taille des grains ou par leur abondance, coïncide avec la disparition de la pyrophyllite. Inversement, la présence de certains sels est étroitement liée à celle de la pyrophyllite, ainsi qu'on l'a montré.

Des observations antérieures ont déjà fait état de la présence concomitante d'anhydrite et de pyrophyllite (FÜCHTBAUER et GOLDSCHMIDT, 1959), de sels divers diagénétiques (calcite, aragonite, jarosite, gypse) et de pyrophyllite (EHLMAN et SAND, 1959). Par ailleurs, l'association du talc et de certains sels est bien connue. On peut citer en particulier la cristallisation diagenétique du talc dans les cassures et les clivages des cristaux d'halite (voir bibliographie dans FRIEDMAN, 1965) et l'association classique talc-carbonates (BIGOTTE, BONIFAS et MILLOT, 1957 ; MILLOT et PALAUSI, 1959, ainsi que de nombreuses observations citées par FRIEDMAN, 1965).

Talc et pyrophyllite sont deux minéraux argileux isotypes caractérisés par l'empilement de feuillets électriquement neutres liés par les seules forces Van der Waals. Il y a peut-être autre chose qu'une simple coïncidence dans la néoformation de ces deux minéraux en milieu chimique concentré. L'association "argile T.O.T. neutre - sels" (carbonates, chlorures, sulfates principalement) est une "paragenèse" de la zone de diagenèse.

3 - La pyrophyllite se développe dans les zones subsidentes

J'ai fait état de la présence de pyrophyllite dans les zones structurales basses et de son absence dans les zones structurales hautes. Les fig. 50 et 51 apportent une précision supplémentaire : le toit de la zone à pyrophyllite est discordant sur la stratigraphie. Il s'élève d'autant plus haut dans la série que celle-ci est plus épaisse.

4 - Hypothèses proposées

Les résultats qui viennent d'être exposés font de la pyrophyllite saharienne une néoformation de la diagenèse associée à une époque (Siluro-dévonien), à un faciès (détritique fin, riche en sels divers), et à une situation paléogéographique (zones centrales subsidentes des bassins). On peut, dès lors, envisager deux moments pour une telle formation.

a) Diagenèse précoce

Il faudrait évoquer un milieu sursalé provoquant la cristallisation des sels dans le sédiment frais et, ultérieurement, de la pyrophyllite.

Certains arguments s'opposent à cette manière de voir. Ce sont en particulier :

- le caractère généralement hyposalin des mers siluriennes au Sahara (BEUF et coll., 1966),

- la température trop peu élevée atteinte par le sédiment au cours des premiers stades de la diagenèse, où l'enfouissement est encore très réduit.

D'autres observations donnent par contre une certaine valeur à cette hypothèse.

- On a mis en évidence en Mer Rouge, où la topographie du fond est inégale, des dépressions dans lesquelles des eaux très chargées en sels se concentrent par gravité. La salinité atteint 271,4 ‰ et la température 44,4°C (SWALLOW et CREASE, 1965). Il n'est donc pas impossible d'envisager des zones de sursalure dans les parties centrales des bassins siluro-dévoniens sahariens, encore que les sursalures du fond de la Mer Rouge soient dues en partie, semble-t-il, au lessivage de série évaporitiques.

- Ensuite l'existence dans ces séries à pyrophyllite de niveaux fossilifères très riches évoque des thanatocoenoses telles que peuvent en produire de brusques variations de salinité (on pense en particulier à la "dalle à Scyphocrinus").

Quoiqu'il en soit de la possibilité de réalisation d'un milieu sursalé dans les parties centrales d'un bassin, l'hypothèse de la néoformation de pyrophyllite par diagenèse précoce au sein du sédiment frais se heurte ici à trop de difficultés. Je préfère l'hypothèse d'une évolution plus nettement post-sédimentaire, en relation avec l'enfouissement des sédiments.

b) Diagenèse tardive

Les modifications diagénétiques subies par un sédiment sont l'effet des équilibres qui se réalisent entre les fractions détritiques et les solutions interstitielles par le jeu des nourrissages, dissolutions, transformations et remplacements. Ces phénomènes ont été étudiés en détail dans les faciès gréseux, en particulier par DAPPLES (1959, 1967) et SIEVER (1959). Il a été montré que les solutions interstitielles se concentraient en profondeur sous l'effet de l'augmentation de la pression. Dans les faciès argileux, l'eau interstitielle est chassée du sédiment par la compaction. Elle est évacuée vers le haut où la porosité est plus élevée. Mais elle migre surtout latéralement, vers les bordures du bassin car la perméabilité latérale est beaucoup plus élevée que la perméabilité verticale. Dans son mouvement, elle abandonne une partie des ions qu'elle tenait en solution, car les micropores du matériel argileux se comportent comme des membranes semi-perméables. Des observations, des travaux théoriques et expérimentaux ont confirmé ce comportement (STRAKHOV, 1957 ; MEADE, 1964 ; WHITE, 1965 ; von ENGELHARDT, 1967).

Dans ces conditions, le milieu sursalé qu'il est nécessaire d'évoquer pour expliquer la paragenèse sels-pyrophyllite est celui de la diagenèse tardive.

C'est dans les parties subsidentes des bassins que les séries seront les plus épaisses, donc que la compaction sera la plus forte. C'est là également, par conséquent, que les solutions interstitielles seront les plus concentrées. Les sels cristalliseront, puis la pyrophyllite, remplaçant micas, kaolinite et quartz (fig. 52).

V - CONCLUSIONS

L'étude pétrographique des sédiments à pyrophyllite du Paléozoïque saharien, faite en collaboration avec G. CHENNAUX (SN.REPAL, ALGER), a permis d'avancer quelques conclusions que je résume (fig. 52).

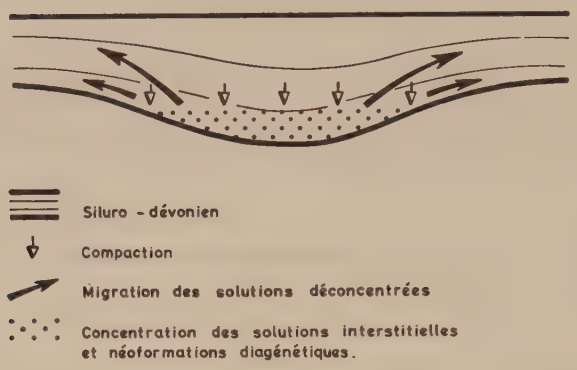


Fig. 52 - Genèse de la pyrophyllite dans les zones subsidentes des bassins. La compaction chasse l'eau des sédiments vers les parties hautes et latérales. Les solutions restantes se concentrent par effet osmotique. Les néoformations sont calcite, dolomite, gypse, halite, pyrophyllite.

1. La pyrophyllite est limitée au Silurien (Gothlandien) et au Dévonien au Sahara. Elle témoigne peut-être d'un milieu géochimique particulier à cette période, mais qu'il n'est pas encore possible de caractériser.

2. Elle est localisée dans les zones à caractère subsident, et s'élève d'autant plus haut dans la stratigraphie que la série est plus épaisse. Elle est donc liée à une certaine profondeur d'enfouissement.

3. La pyrophyllite est diagénétique, remplaçant d'autres minéraux (micas, kaolinite, quartz), et associée à des sels eux-mêmes diagénétiques, tels que calcite, dolomite, halite, gypse.

4. La pyrophyllite et les sels qui l'accompagnent auraient pris naissance au cours d'une diagenèse tardive, liée à la concentration des solutions interstitielles sous l'effet de la compaction. (1)

---

(1) Note ajoutée en cours d'impression : la remise à l'étude des échantillons à pyrophyllite a permis de préciser le degré atteint par cette diagenèse tardive (CHENNAUX, DUNOYER et PETRACCO, 1970). Il s'agit déjà de métamorphisme anchizonal caractérisé par la paragenèse chlorite-illite-allevardite-pyrophyllite-rutile-chloritoïde et par le pouvoir réflecteur élevé des particules charbonneuses (anthracites). Ce métamorphisme se fait plus intense d'est en ouest, depuis le Grand Erg Occidental vers le bassin de Tindouf, comme le montre la disparition plus ou moins précoce de la kaolinite, la valeur des cristallinités de l'illite et la teneur en rutile. Il peut s'observer dans le bassin de Tindouf, le bassin de Tarfaya, la bordure ouest de l'Erg Occidental, l'Ougarta et l'Ahnet. Une telle répartition coïncide, à grande échelle, avec les aires qui furent, au Sahara, affectées par l'orogenèse hercynienne (FABRE, 1969).

CHAPITRE VII

LE FORAGE DE PIERREFEU (GARD, FRANCE)

Le forage de PIERREFEU 1, implanté sur la Costière nîmoise, a été exécuté entre le 17 décembre 1962 et le 11 novembre 1963 par la Compagnie d'Exploration Pétrolière (CEP), société du groupe du Bureau de Recherches de Pétrole (BRP), fusionnée en 1966 dans l'Entreprise de Recherches et d'Activités Pétrolières (ERAP, ELF). Il avait pour but d'étudier l'évolution en direction du NE des magasins ayant fourni des indices et une production sub-commerciale dans les sondages de Gallician et Vauvert. On se proposait aussi d'explorer la base de la série tertiaire, encore mal connue, et le sommet du substratum mésozoïque.

C'est à l'initiative du Bureau de Recherches de Pétrole que les échantillons de ce forage ont été mis à l'étude à Strasbourg en vue de déterminer les recristallisations dues à la diagenèse d'enfouissement. Le propos était justifié par la grande profondeur atteinte (5137 m), le gradient géothermique moyen (30 m), le caractère subsident et rapide de la sédimentation, où l'Oligocène seul représente 3397 m. Je tiens à exprimer mes remerciements au BRP ainsi qu'à la CEP pour leur apport à ce travail.

I - SITUATION GEOLOGIQUE

Le cadre géologique de la région camarguaise, sa structure profonde, l'analyse des séries qui la constituent ont fait l'objet d'importants travaux auxquels je renvoie le lecteur désireux d'approfondir le contexte géologique du forage de Pierrefeu (fig. 53).

Ce sont d'abord trois thèses (GOTTIS, 1957; DEMANGEON, 1959; SITTLER, 1965) ; ensuite deux articles apportant de nouvelles données paléogéographiques et sédimentologiques sur l'Oligocène (DEMANGEON, GLAÇON et MATTAUER, 1962; SITTLER et DEMANGEON, 1963) ; enfin deux mises au point effectuées pour les besoins de la recherche pétrolière (JULLIAN, 1957; BRUNEAU, 1960). La synthèse de BRUNEAU apporte une somme considérable de renseignements sur la structure profonde du bassin camarguais, appuyés sur un grand nombre de forages et de profils géophysiques.

La Camargue, dans sa structure profonde, constitue un lien entre la Provence et le Languedoc méditerranéen. Les plis pyrénéo-provencaux s'y développent largement, en accidents chevauchants, la plupart déversés vers le nord. La série oligocène, épaisse, témoigne de l'existence d'un "sillon pyrénéo-provençal", formant une importante unité paléogéographique.

Un des traits majeurs du comblement de ce sillon est l'existence de discordances de ravinement, qui se manifestent à quatre reprises :

- à la base de la "série grise", d'abord rapportée à l'Eocène, puis à l'Oligocène, qui repose sur le Mésozoique ;
- à la base de la "série rouge",
- à la base de la série molassique de l'Aquitanien ;
- à la base du Pliocène.

L'examen des isobathes du substratum mésozoïque indique que le forage de Pierrefeu est situé dans la zone où la série tertiaire est la plus épaisse. La diminution d'épaisseur vers le nord-ouest est extrêmement rapide, passant de 5000 m à 500 m en moins de 10 kilomètres.

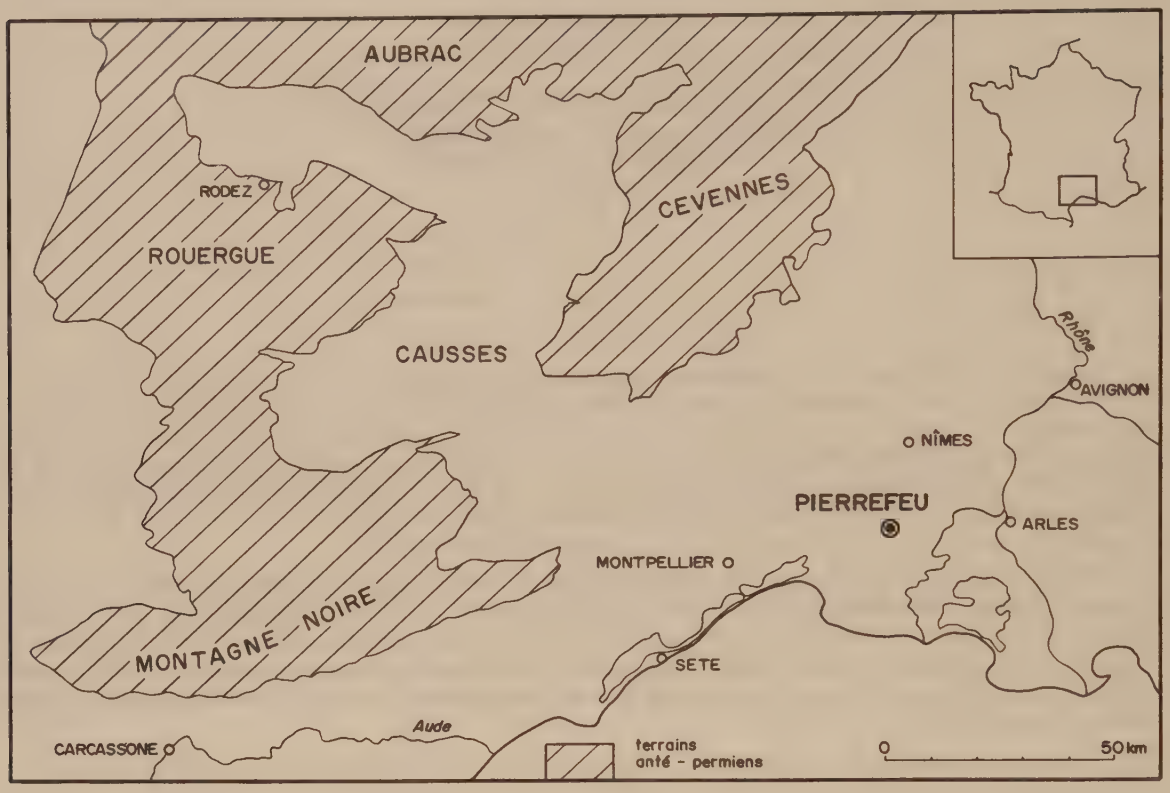


Fig. 53 - Situation du forage de Pierrefeu.

II - LES SERIES

Les séries traversées par le forage de Pierrefeu ont été représentées sur la figure 54.

Sur les calcaires marneux gris foncé du Valanginien repose un Oligocène très épais (3180 m, sans compter l'Aquitanien). Il a été divisé en trois grands ensembles. De bas en haut :

- une "série grise" de 2060 m d'épaisseur, essentiellement détritique, faite d'argilites et de marnes noires finement gréseuses, de calcaires marneux gris foncé à passées gréseuses ou conglomératiques.

Des niveaux ligniteux s'observent à la partie inférieure de la série.

- une série rouge" de 210 m d'épaisseur, faite de calcaires argilo-gréseux gris à gris-vert, alternant avec des argilites gréseuses versicolores.

- un "série calcaréo-salifère" de 910 m d'épaisseur, formée à la base de marno-calcaires bruns bitumineux et ligniteux, bientôt surmontés par un complexe épais d'anhydrite, de sel et d'argiles silteuses grises à brunes.

L'Aquitanien, puis le Plaisancien qui surmontent cet Oligocène, forment un ensemble épais et monotone d'argiles sableuses.

Les échantillons étudiés ici sont des carottes, dont la position est indiquée sur la figure 54. Ils représentent les faciès suivants.

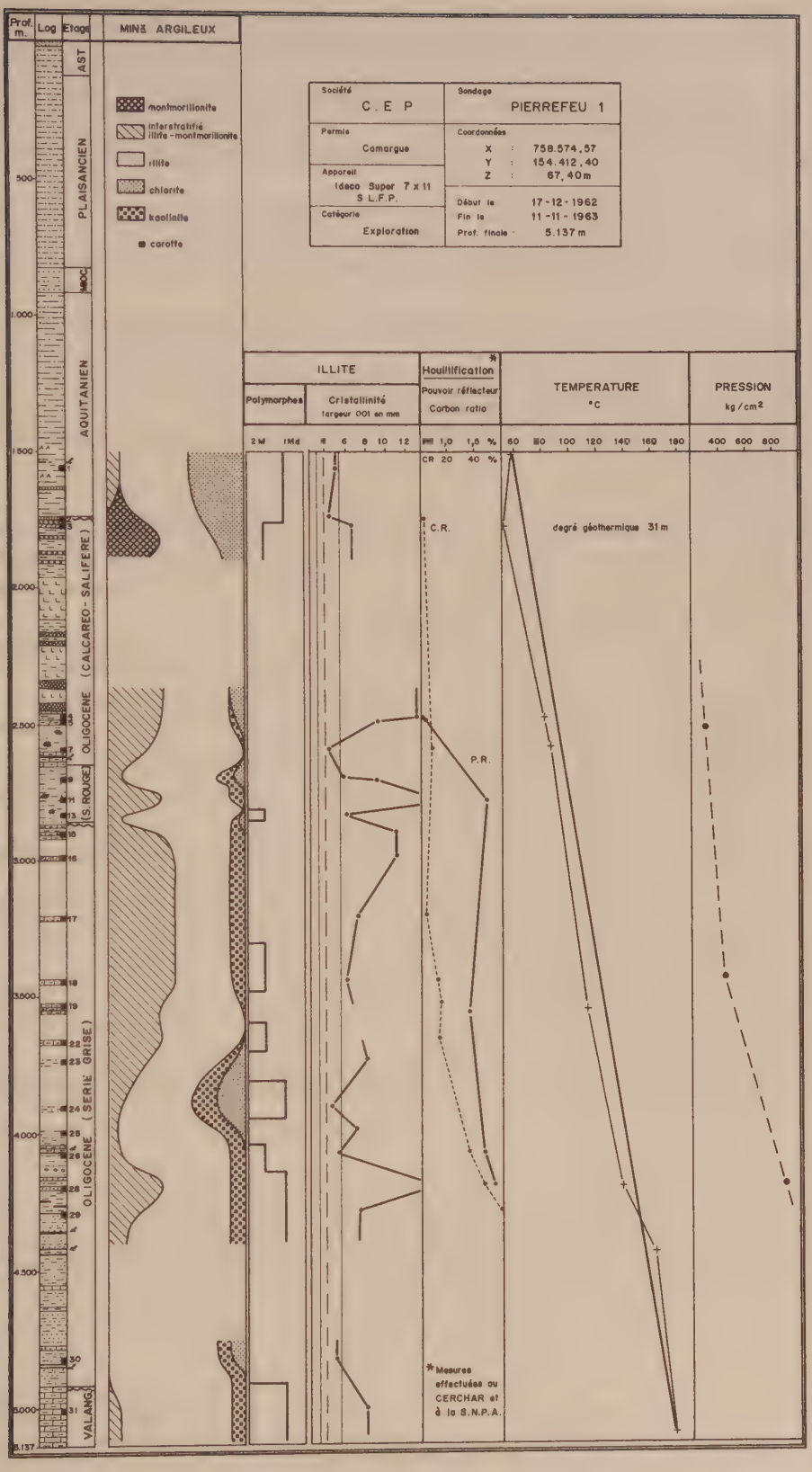


Fig. 54 - Forage de Pierrefeu (Camargue). Analyses lithologiques et minéralogiques. Gradients physiques.

Carotte 1 - 1554,50 m Marne silteuse grise compacte. Nombreux débris organiques brun clair à noir.

Carotte 2 - 1746,00 m Marne silteuse grise feuilletée (minces interlits argileux). Débris organiques bruns à noirs.

Carotte 3 - 1775,00 m Marne très légèrement silteuse, fine et compacte, gris clair. Débris organiques bruns à noirs. Dolomite décelée aux rayons X.

Carotte 4 - 2476,50 m Marne silteuse grise et calcaire gréseux légèrement glauconieux. Débris ligneux rares noirs.

Carotte 5 - 2484,00 m Grès à ciment calcaire et marne silteuse grise. Glauconie abondante. Micas détritiques abondants plus altérés dans le grès que dans la marne.

Carotte 7 - 2589,90 m Marne grise silicifiée par taches. Sphérules opaques. Calcite sphérolitique. Foraminifères.

Carotte 9a - 2705,00 m Marne brun-rouge silteuse glauconieuse. Micas détritiques à des stades d'altération divers.

Carotte 9b - 2706,50 m Marne silteuse grise compacte. Muscovites détritiques très fines et très fraîches.

Carotte 11 - 2774,00 m Marne silteuse grise compacte.

Carotte 13a- 2833,60 m Calcaire marneux compact brun-rouge. Calcite microcristalline avec quelques taches de recristallisation.

Carotte 13b- 2834,10 m Idem.

Carotte 15 - 2902,60 m Marne brun-rouge à taches grises. Débris organiques en petits grains.

Carotte 16 - 2987,90 m Calcaire marneux brun-rouge à taches grises. Niveaux silteux et microconglomératiques.

Carotte 17 - 3212,30 m Calcaire marneux gris foncé et marne silteuse à niveaux conglomératiques cimentés par de la calcite spathique. Sphérules opaques.

Carotte 18 - 3445,50 m Calcaire argilo-silteux gris foncé. Grains de quartz corrodés. Nombreux sphérules opaques.

Carotte 19 - 3530,50 m Calcaire argilo-silteux gris foncé à microfissures remplies de calcite.

Carotte 22 - 3665,60 m Idem

Carotte 23 - 3739,70 m Marne finement gréseuse (50µ), gris foncé, à débris organiques noirs.

Carotte 24 - 3909,00 m Calcaire argilo-silteux gris foncé. Quelques muscovites détritiques fines et assez fraîches.

Carotte 25 - 3998,00 m Marne silteuse gris foncé. La calcite recristallise par place en larges cristaux spathiques.

Carotte 26 - 4079,90 m Siltstone argilo-calcaire gris foncé. Niveaux ligniteux et pyriteux. Nombreux plagioclases. Micas détritiques rares assez frais.

Carotte 28 - 4195,50 m Calcaire ligniteux gris foncé.

Carotte 29 - 4293,50 m Marne silteuse à lignite.

Carotte 30 - 4824,00 m Marne compacte gris foncé à niveaux de lignite. Il se développe une fine recristallisation orientée de quartz, calcite et séricite.

Carotte 31 - 5012,20 m Calcaire marneux gris foncé, graveleux et silteux. Grains de quartz corrodés. Pas de micas détritiques.

III - LES MINERAUX ARGILEUX

La fraction inférieure à 2µ a été extraite de tous les échantillons après broyage et décarbonatation. Des diffractogrammes ont été faits sur préparation orientées de 2 à 30° (2θ), ainsi que sur poudre désorientée de 5 à 65° (2θ).

La répartition des minéraux argileux est représentée sur la figure 54. On y distingue plusieurs familles que je décrirai l'une après l'autre.

1 - La montmorillonite. Elle n'apparaît que dans le haut de la série, dans les carottes 2 et 3. Elle présente une réflexion (001) typique à 15 Å, passant à 10 après chauffage et montant à 17 après glycolage. Notons que la température des roches en place est ici de 60° C environ (fig. 55, car. 3).

2 - Les interstratifiés illite-montmorillonite ($10 - 14_M$). Ils sont présents du haut en bas de la série où ils constituent, avec l'illite, l'essentiel des argiles. Ce sont des interstratifications irrégulières, où les interfoliaires de type illite et ceux de type montmorillonite sont représentés en proportion quelconque. L'interfoliaire illite domine toutefois dans la plupart des cas, et les espacements de base se situent principalement entre 10 et 12 Å (fig. 55, car. 16).

Une certaine régularité tend à se manifester parfois et l'espacement basal dominant se situe vers 11 Å (fig. 55, car. 7).

3 - L'illite. L'illite forme un fond continu du haut en bas de la série. Les caractéristiques principales n'offrent aucune variation cohérente le long du forage, ainsi qu'on peut le voir sur la figure 54.

L'examen des variations corrélatives de l'épaisseur du pic de base à mi-hauteur (ou cristallinité) et du rapport d'intensité des pics à 5 Å (002) et 10 Å (001) a été fait selon la méthode d'ESQUEVIN (1969) (fig. 56). Le rapport I(002)/I(001) varie peu, ce qui tend à montrer que les illites ont une composition chimique assez homogène dans leurs couches octaédriques.

On peut penser que les roches-mères de ces illites étaient sensiblement constantes.

En revanche la "cristallinité" des illites varie largement et de façon désordonnée, exprimant un degré d'altération très variable, provoquant une ouverture irrégulière des feuillets.

Il faut observer, enfin, qu'une corrélation positive existe entre les deux paramètres. Elle a un coefficient faible, il est vrai, mais elle témoigne sans doute de l'action encore discrète, mais déjà effective, d'une diagenèse d'enfouissement.

Tableau XVIII

PIERREFEU 1. Valeurs en Å de d (060) pour les illites

Car. n°	d (060)	Car. n°	d (060)	Car. n°	d (060)
2	1,495	13a	1,502	23	1,496
3	1,506	13b	1,499	24	1,499
4	1,502	15	1,504	25	1,500
5	1,500	16	1,500	26	1,499
7	1,495	17	1,498	28	1,500
9a	1,502	18	1,501	29	-
9b	1,502	19	1,497	30	1,496
11	1,501	22	1,495	31	1,498

Les polymorphes de l'illite ont été déterminés sur les diagrammes désorientés et reportés sur la figure 54.

- 1Md est le polymorphe dominant.
- 2M est souvent présent et devient important vers la base de la série.
- 1M s'observe à l'état de traces dans les carottes 1, 2, 3, 4, 9a, 9b, 19, 23 et 29.

4 - La chlorite. Bien représentée dans le haut de la série, elle disparaît et réapparaît irrégulièrement le long de l'Oligocène. Elle est absente dans le Valanginien. Elle est en proportion trop faible dans la fraction argileuse pour que les mesures d'intensité relative des pics, en relation avec la composition chimique (BROWN, 1955; BRINDLEY et GILLERY, 1956), soient possibles sur les diagrammes de poudre. La seule donnée qui permette d'approcher la constitution chimique de cette chlorite est la mesure précise de d (001) et d (060)

- d (001) varie de 14,0 à 14,2 Å. La moyenne artihmétique se situe à 14,14 Å.
- d (060), très constant, est de 1,54 Å. Le paramètre cristallographique b a donc pour valeur 9,24 Å.

Selon les données compilées par BRINDLEY (1961), ces valeurs correspondraient respectivement à

$$x = 1,4 \quad \text{et} \quad y = 1,0$$

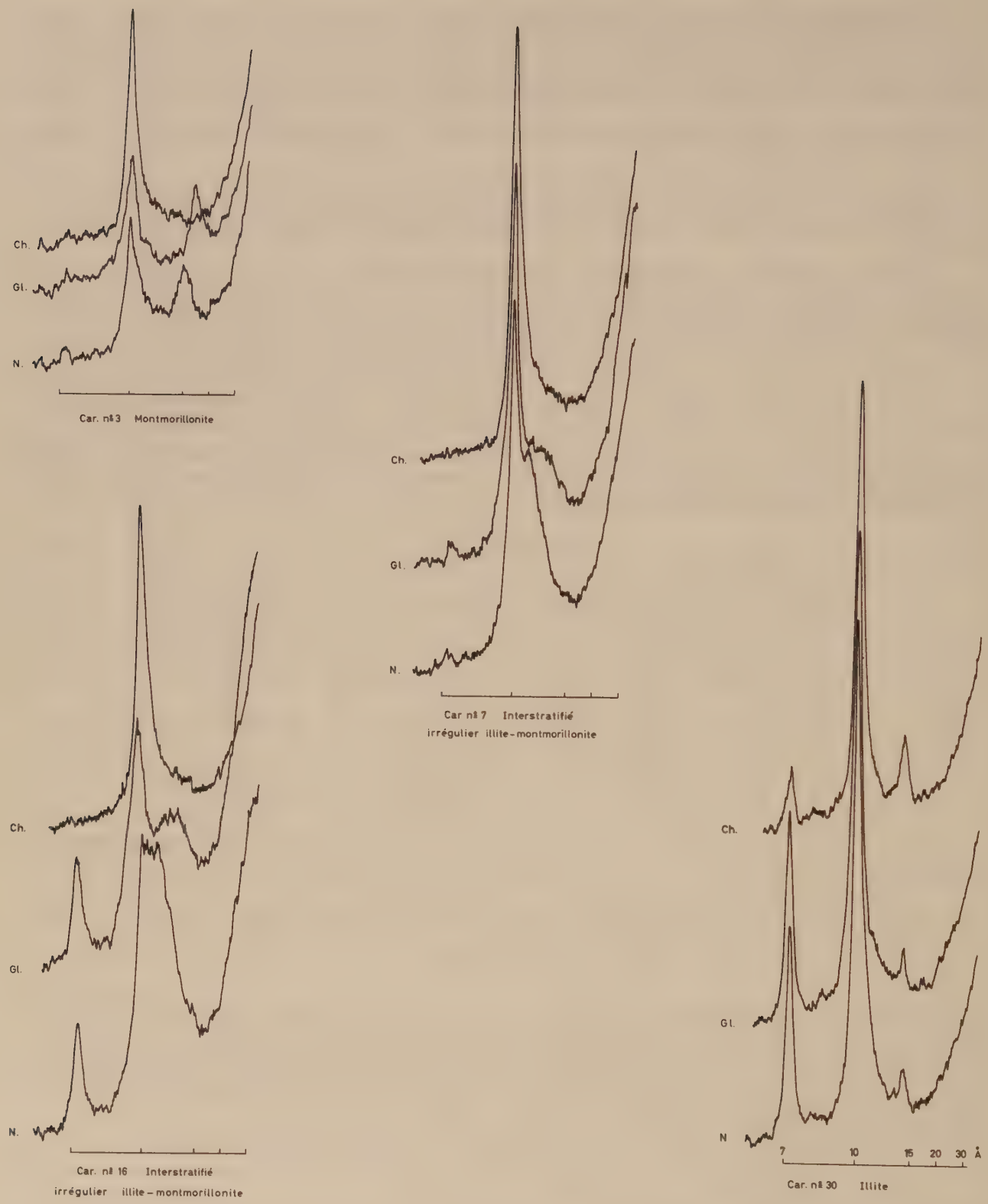


Fig. 55 - Forage de Pierrefeu. Association de minéraux argileux.

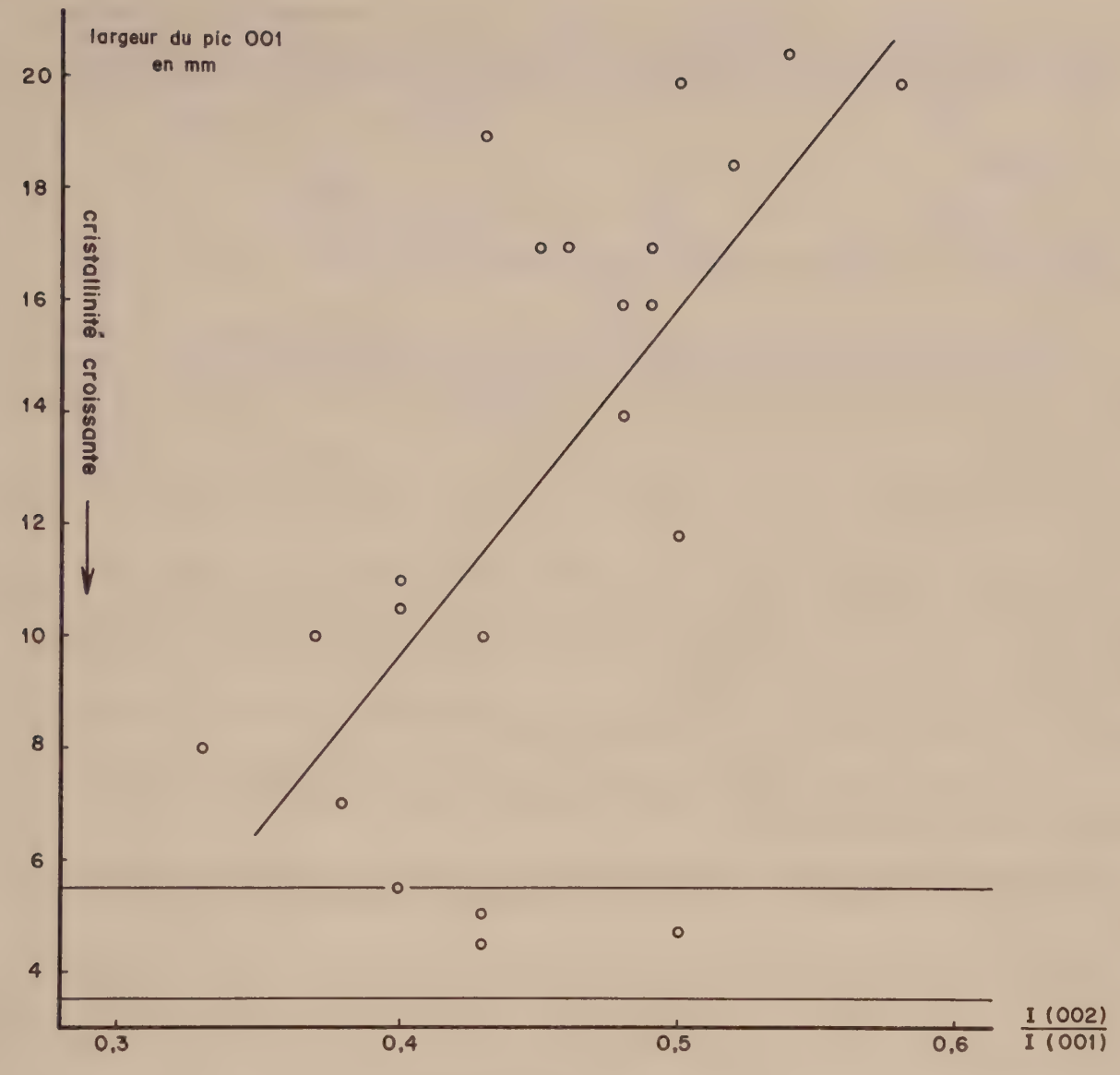


Fig. 56 - Forage de Pierrefeu. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

dans la formule générale :

$$Mg_{6-x-y}\ Fe_y\ Al_x\ (Si_{4-x}\ Al_x)\ O_{10}\ (OH)_8$$

Les chlorites de l'Oligocène de Pierrefeu auraient donc la formule approchée moyenne suivante :

$$Mg_{3,6}\ Fe_{1,0}\ Al_{1,4}\ (Si_{2,6}\ Al_{1,4})\ O_{10}\ (OH)_8$$

Cette formule les situe à la limite des ripidolites et des shéridanites selon la classification de HEY (1954) reprise par FOSTER (1962) (voir fig. 88).

5 - La kaolinite. Les termes supérieurs de la série en sont dépourvus. C'est à la base de la "série calcaréo-salifère" qu'elle apparaît, pour demeurer en proportion discrète et constante dans

dans la fraction argileuse. Cette kaolinite ne se signale par aucune particularité cristallographique. Tout au plus peut-on dire que l'ordonnance des feuillets n'est pas parfaite. Les pics de 4,43 à 4,12 Å se distinguent mal sur les diagrammes de poudre, où ils forment une bande continue.

IV - LA CHIMIE

A - Eléments majeurs

Les analyses sont reportées dans le tableau ci-après. Elles appellent un certain nombre de commentaires·

1 - Roche totale et fraction inférieure à 2μ ont des compositions très voisines. Seuls varient sensiblement les alcalins. Il y a plus de sodium dans la roche totale, soit sous forme de plagioclases, qu'on ne retrouve pas dans la fraction inférieure à 2μ, soit sous forme de solutions interstitielles, ou encore de sels solubles qui sont évacués lors de la mise en suspension et du lavage pour l'extraction des fines.

Le potassium est en teneur plus élevée dans la fraction fine, évidemment lié à l'illite. On peut remarquer, en outre, que c'est l'échantillon le plus riche en illite (car. 30) qui a la plus forte teneur en potassium.

2 - La teneur en sodium de la roche totale décroît régulièrement avec la profondeur. On peut supposer que ce sodium n'est généralement pas sous forme de plagioclase ou d'albite, puisque l'examen des lames minces n'a permis d'en déceler que dans un seul échantillon (car. 26). Si le sodium est lié aux solutions interstitielles, sa variation peut alors s'expliquer de deux manières, par la sédimentogenèse ou par la diagenèse.

- Par la sédimentogenèse : le milieu voit sa salinité augmenter au cours de l'Oligocène. Les eaux connées se chargent progressivement en sodium

- Par la diagenèse : l'enfouissement provoque un essorage des sédiments. Ceux-ci sont trop peu argileux pour jouer le rôle de filtre osmotique et les eaux connées sont chassées avec les sels qu'elles renferment en solution.

3 - La teneur en fer total de la fraction fine est assez faible (3 à 6,5 %) si on songe que le fer se partage entre la chlorite et l'illite, et que les illites des sédiments ont une teneur en fer total de 3 à 10 %.

L'illite de Pierrefeu doit donc être particulièrement pauvre en fer, ce qui confirme les données des rayons X.

Tableau XIX

PIERREFEU 1. Eléments majeurs

Carotte n°		SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Somme
1	r.t.	44,2	12,7	4,18	14,3	5,90	0,121	0,66	1,38	2,62	15,8	101,9
	< 2 μ	41,8	19,0	4,60	8,35	6,55	0,083	0,81	0,81	4,00	13,8	99,8
96	r.t.	40,0	9,43	1,38	22,4	2,64	0,018	0,50	0,50	2,37	21,3	100,6
	< 2 μ	42,6	14,0	1,38	15,0	3,50	0,021	0,57	0,41	4,05	17,6	99,2
24	r.t.	28,5	10,5	4,20	26,4	3,40	0,051	0,50	0,48	1,89	25,9	101,9
	<2μ	27,3	9,05	3,95	26,6	3,00	0,050	0,52	0,42	2,52	27,0	100,4
30	r.t.	45,3	22,1	2,17	8,22	3,22	0,029	0,86	0,46	4,18	13,1	99,6
	<2 μ	42,2	22,2	1,78	8,25	3,19	0,028	0,87	0,50	4,78	13,6	97,4

B - Eléments en traces et chimie organique (STEVAUX, VAN DER WEIDE et KULBICKI, 1965, Centre de Recherches de Pau, SNPA, travaux non publiés)[1]

---

(1) Je remercie la SNPA de m'avoir autorisé à faire état de ces résultats.

1 - Eléments en traces

Un certain nombre d'éléments en traces ont été dosés dans les carottes de Pierrefeu par analyse spectographique UV. Vanadium, molybdène, cuivre, nickel, chrome, cobalt, zinc, baryum et plomb n'offrent pas de teneur exceptionnelle ou significative. Le bore et le gallium, en revanche, donnent d'intéressantes indications (fig. 57).

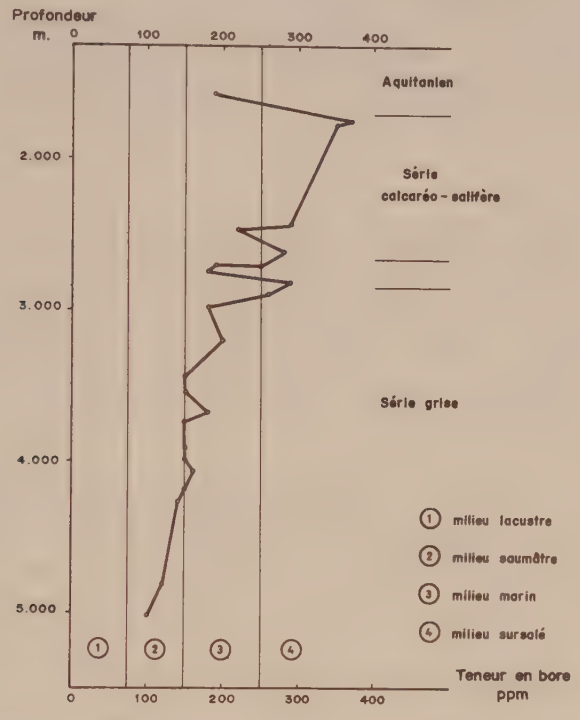


Fig. 57 - Forage de Pierrefeu. Teneurs en bore (d'après STEVAUX, VAN DER WEIDE et KULBICKI). Limites de milieu d'après STEVAUX et KULBICKI (1966).

Le bore, indicateur classique de salinité du milieu, voit sa teneur augmenter régulièrement de la base vers le haut de l'Oligocène, pour atteindre des valeurs élevées dans la "série calcaréo-salifère". Il décroît ensuite dans l'Aquitanien. La corrélation avec les faciès est bonne. A un régime lacustre ou laguno-lacustre de l'Oligocène inférieur fait suite une série où la sédimentation détritique cède le pas progressivement à la sédimentation chimique qui prédomine dans l'Oligocène supérieur où les teneurs en bore atteignent 350 ppm.

Le gallium varie généralement en sens inverse du bore et témoigne ainsi des influences continentales. Sa teneur est particulièrement forte dans la "série rouge" où les apports détritiques continentaux sont évidents.

2 - Chimie organique

- Le carbone organique total est en général inférieur à 1 % sauf dans les carottes 2, 26, 28, et 29, où les valeurs sont respectivement de 3,1 - 6,5 - 3,3 et 3,0 %.

- Le "carbon ratio", ou rapport carbone fixe/carbone organique total progresse régulièrement (fig. 54). Ce fait est à mettre en relation avec les mesures de pouvoir réflecteur des particules charbonneuses exposées plus loin.

- La constitution des hydrocarbures ne montre pas de variation significative. Le taux d'hydrocarbures saturés, en particulier, n'est pas plus élevé à la base de la série qu'en haut, comme cela s'observe dans les séries où la diagenèse d'enfouissement a été poussée (ALBRECHT, 1969).

V - DONNEES COMPLEMENTAIRES

On exposera ici quelques observations ou mesures qui peuvent apporter des éléments de discussion dans l'interprétation de la série.

1 - Le "pouvoir réflecteur" des particules charbonneuses

Il a été mesuré en photométrie par ALPERN au Laboratoire du CERCHAR[1]. Les résultats sont représentés sur la figure 54. Jusqu'à 2500 m de profondeur la houillification des particules est peu avancée et se situe entre les "lignites durs" (P.R. = 0,5 %) et les "flambants secs de Lorraine" (P.R. = 0,7 %). Plus bas la carbonification est plus avancée et atteint le stade des "charbons demi-gras" (P.R. = 1,5 %).

2 - La densité globale des roches

Les déterminations faites par la méthode rapide exposée page 50 sont reportées sur la figure 58. Les échantillons les moins denses sont en haut du forage et les plus denses à la base, mais les densités ne se répartissent pas suivant un gradient régulier. La densité atteint des valeurs élevées dès la profondeur de 2500 m, valeurs à peine inférieures à celle de la calcite pure. Compte tenu de la nature calcaire de ces roches, la porosité en petit doit être voisine de zéro.

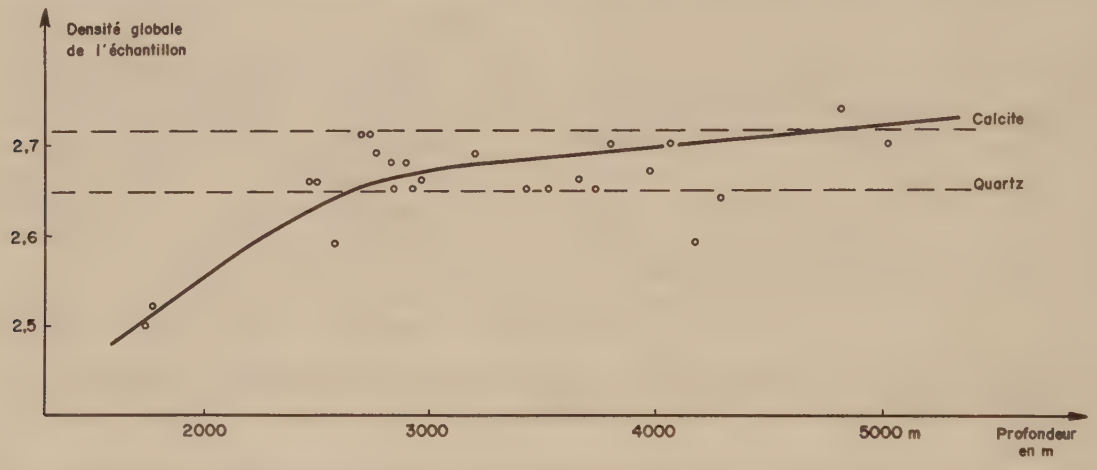


Fig. 58 - Forage de Pierrefeu. Densité globale des roches et enfouissement.

VI - CONCLUSIONS PARTIELLES A L'ETUDE DU FORAGE DE PIERREFEU

Les mesures effectuées avaient pour but de rechercher les variations de tous ordres offertes par les sédiments le long d'une verticale de plus de 5000 m. Une fois l'inventaire fait, il importe de faire la part de ce qui est variation sédimentologique et variation diagénétique, dans la mesure où une telle distinction est possible.

A - Variations sédimentologiques

1 - La salinité du milieu croît progressivement depuis la base de l'Oligocène laguno-lacustre jusqu'aux faciès salifères de l'Oligocène supérieur. On dispose de plusieurs critères convergents : teneur en bore, teneur en sodium composition des hydrocarbures, faciès lithologique.

2 - L'illite, détritique, est sensiblement constante en qualité et en quantité, malgré les changements de milieu qu'on vient de voir. Sa cristallinité variable, de 6 en moyenne, ainsi que la présence sporadique des polymorphes 2M et 1M prouve que le degré d'altération des illites sur

---

(1) Je remercie M. ALPERN ainsi que la direction du CERCHAR de m'autoriser à faire état de ces résultats inédits.

le continent était assez peu poussé. On sait pourtant que le climat était de type hydrolysant, chaud et humide (SITTLER, 1965), mais on peut penser qu'une tectonique vigoureuse, donc une érosion active, soustrayait rapidement les minéraux à l'altération superficielle. L'épaisseur de l'Oligocène en est une preuve.

3 - La chlorite, très secondaire pendant tout l'Oligocène, se développe largement au sommet de ce système, et devient importante dans l'Aquitanien. L'origine de cette chlorite est à rechercher dans les zones épimétamorphiques cévenoles. Celles-ci affleuraient sans doute dès avant la fin de l'Oligocène, mais la région de Pierrefeu pouvait se trouver hors de leurs apports, de par le jeu de l'hydrographie continentale et marine.

4 - La kaolinite forme un fond continu durant l'Oligocène pour céder le pas ensuite à la chlorite. Nous pouvons voir là l'effet de ce changement dans les conditions d'alimentation du bassin que je viens d'évoquer. La présence de kaolinite durant tout l'Oligocène témoigne du climat chaud et humide qui règnait encore. Sans doute la quantité relativement faible de cette kaolinite et sa nature partiellement désordonnée sont à mettre en rapport avec l'intensité des phénomènes d'érosion, qui ne permettait pas aux altérations kaolinisantes de se développer pleinement.

B - Variations diagénétiques

Malgré l'importance des changements sédimentologiques qui marquent cette série, deux phénomènes me semblent pouvoir être mis sur le compte d'une transformation postsédimentaire. Ils ont trait l'un aux minéraux argileux, l'autre aux débris végétaux.

1 - La régression des minéraux argileux gonflants

L'examen de la figure 54 fait apparaître trois zones :

- une zone supérieure à montmorillonite,

- une zone moyenne où se développe un interstratifié irrégulier illite-montmorillonite, formant jusqu'à 50 % de la fraction argileuse,

- une zone inférieure où la proportion des interfoliaires gonflants est très faible.

Il n'y a pas de raison de penser que ce sont là des variations liées à la sédimentation. Si tel était le cas, l'augmentation progressive de salinité dans l'Oligocène inférieur aurait provoqué la fermeture des feuillets gonflants par agradation dans le milieu marin, phénomène désormais classique. Or c'est précisément le contraire qu'on observe ici.

L'explication qu'on peut avancer est alors la suivante. A l'origine, la fraction argileuse aurait été faite, outre de kaolinite et de chlorite, d'un stock de minéraux argileux micacés partiellement ouverts, offrant tous les types d'interfoliaires depuis celui, potassique, de l'illite, jusqu'à celui de la montmorillonite, hydraté, gonflant. La diagenèse d'enfouissement a provoqué une agradation quasi nulle dans le haut du forage, laissant subsister la montmorillonite, et de plus en plus vigoureuse au fur et à mesure de l'augmentation de température et de pression vers le fond du forage.

Une petite proportion d'interfoliaires gonflants subsiste à la base. La diagenèse a été impuissante à provoquer une illitisation générale, ainsi qu'une amélioration de la cristallinité de l'illite, mais une corrélation positive de deux paramètres de l'illite est déjà lisible, et cette corrélation est caractéristique de la diagenèse d'enfouissement.

Une telle interprétation sera reprise plus loin et confrontée avec les données de séries similaires. Elle trouve un élément de confirmation dans le fait que les séries de même âge, à l'affleurement dans les bassins voisins, sont riches en minéraux gonflants du haut jusqu'en bas, et en particulier à la base de l'Oligocène (SITTLER et DEMANGEON, 1963).

2 - La houillification

Les données convergentes des mesures de "carbon ratio" et de "pouvoir réflecteur" des particules charbonneuses apportent un soutien à l'hypothèse d'une diagenèse d'enfouissement, s'exerçant d'une façon discrète mais certaine.

3 - Ces transformations diagénétiques sont discrètes

Il convient d'évoquer tout de suite les raisons qu'on peut mettre en avant pour expliquer une telle discrétion. On peut être surpris de trouver à plus de 5000 m de profondeur, sous une pression supérieure à 800 kg/cm^2, à une température dépassant 180°C, des interfoliaires gonflants et de la kaolinite. Ces minéraux sont en effet inhabituels dans de telles conditions. Des éléments d'explication peuvent être recherchés dans les deux caractères suivants.

- La porosité des roches est très faible. Ces calcaires marneux s'opposent à la circulation des solutions interstitielles, milieu réactionnel indispensable.

- La série est relativement récente (Oligocène). Certaines réactions peuvent avoir des vitesses si faibles, que le facteur temps devient primordial.

CHAPITRE VIII

LE FORAGE DE CONTRES (SUD-OUEST DU BASSIN DE PARIS)

Ce forage fut exécuté en 1959 par la société Mobil Repga, et implanté près de la petite ville de Contres (Loir-et-Cher) entre Tours et Bourges (1). Il a traversé, sous le Tertiaire, un Crétacé et un Jurassique assez épais, puis est entré, à 1 106 m de profondeur, dans un Permo-trias détritique où il est resté jusqu'à la profondeur finale de 2 623 m.

Il s'agit d'un bassin permo-triasique. Les contours en sont maintenant connus grâce aux recherches systématiques entreprises en 1963 par la Société Nationale des Pétroles d'Aquitaine (SNPA). Une récente publication offre une synthèse des résultats acquis par la reconnaissance géologique, géophysique et les forages (SAPIN, 1967). J'y renvoie le lecteur désireux d'approfondir les données géologiques et paléogéographiques de cette région. Retenons seulement ici que le forage de Contres a traversé, dans sa partie centrale, un bassin subsident, où le Permo-trias détritique s'est accumulé sur plus de 1 500 m d'épaisseur pour se trouver ensuite enfoui sous plus de 1 000 m de Mésozoïque (fig. 59).

Ces conditions sont favorables aux manifestations d'une diagenèse d'enfouissement. Les minéraux des argiles y ont été sensibles, ainsi qu'on va le voir.

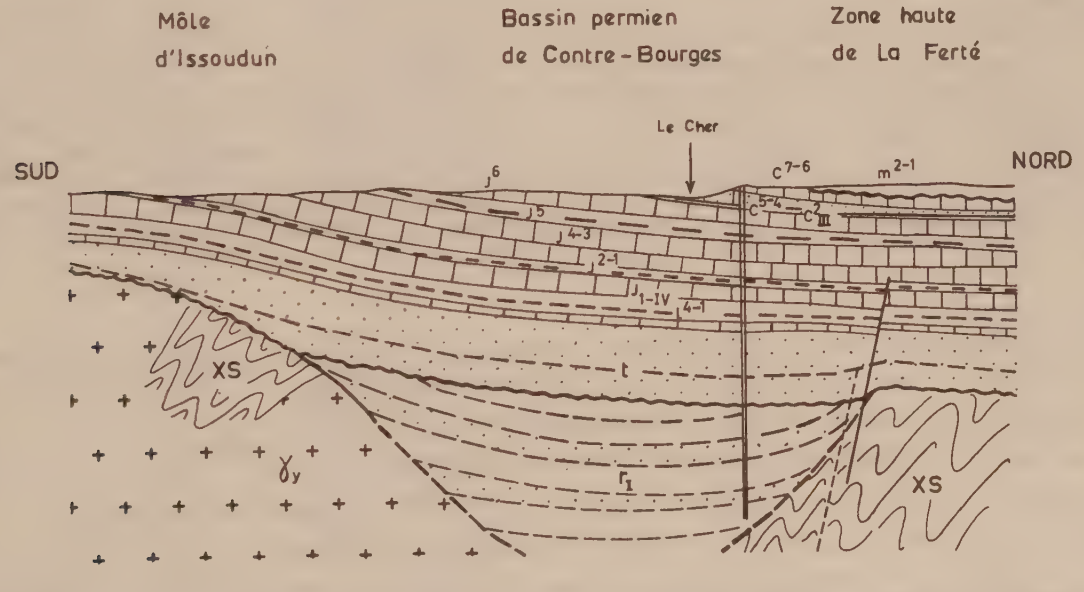


Fig. 59 - Coupe géologique du bassin permien de Contres (d'après SAPIN, 1967). Le double trait indique la situation approximative du forage de Contres.

---

(1) Je remercie la société Mobil d'avoir donné accès à ce forage, ainsi que M. LUCAS qui a fait l'échantillonnage en 1961.

I - LITHOLOGIE DU PERMO-TRIAS

La figure 60 en donne une représentation schématique, qu'on peut compléter par les commentaires suivants.

Au-dessous des schistes, calcaires et dolomies du Lias, le toit du Trias, à 1 106 m de profondeur, est constitué d'argile bariolée, dolomitique et sableuse.

Le Permo-trias forme un ensemble détritique très épais, très homogène, dont le forage n'a d'ailleurs pas atteint la base à 2 623 m de profondeur. Entre les carottes 5 et 6, ce sont des sables et des grès, blancs, fins à conglomératiques, durs à friables, pyriteux, à traces de charbon, à fines passées d'argile rouge, orange, grise et brune. Les galets de quartzites sont abondants. Rares intercalations d'anhydrite blanche.

Entre les carottes 6 et 7, le faciès est très uniforme : sables et grès fins à grossiers à ciment d'argile rouge-orange et d'anhydrite.

La partie inférieure de la série, entre les carottes 7 et 8, voit la proportion d'argile augmenter sensiblement. C'est par endroit une argile schisteuse, d'aspect cireux, finement micacée, sableuse et anhydritique. Au dessous de 2 500 m s'observent des lits de grès rouge argileux à grain fin, abondamment moucheté de blanc et de vert.

Trois carottes seulement ont été extraites du Permo-trias. En revanche, un échantillonnage très serré des cuttings (307 échantillons) donne valeur sûre aux données qui sont résumées sur la figure 60.

II - LES MINERAUX DES ARGILES

1 - L'illite

C'est le minéral dominant, ainsi qu'il est de règle dans les séries de type détritique accusé. Il s'agit d'illite ouverte. On sait que le degré d'ouverture peut se chiffrer en mesurant l'épaisseur du pic 001 à mi-hauteur. Ces mesures sont reportées sur la figure 60.

·Cristallinité

Dans la partie haute de la série la cristallinité est médiocre, c'est-à-dire l'illite assez ouverte. On assiste ensuite à une augmentation légère de l'épaisseur du pic, qui culmine vers 1 850 m de profondeur. Il y a là autre chose qu'une ouverture plus grande de l'illite. Il se développe des minéraux interstratifiés de type I-M ou I-V. Plus bas, l'illite se ferme peu à peu. Enfin, au dessous de 2 300 m, l'illite est constamment fermée, avec une cristallinité voisine de celle des zones anchimétamorphiques. Aucun changement lithologique au dessous de 2 300 m ne vient justifier cette forte cristallinité. Il faut l'attribuer à la recristallisation diagénétique. Cette attribution est très compatible avec les conditions de température (plus de 100°C), et l'âge relativement ancien de la série.

Type d'ouverture

Le comportement de l'illite au traitement par l'éthylène-glycol et au chauffage permet de distinguer différents types d'ouverture. Ils sont indiqués fig. 60 et 61.

I illite fermée, insensible au glycol et au chauffage (fig. 61, n° 5)

I_V illite ouverte, ne gonflant pas au glycol, se tassant au chauffage

I_{MV} illite ouverte, gonflant très légèrement au glycol, se tassant au chauffage (fig. 61, n° 1)

I_M illite ouverte, gonflant légèrement au glycol, se tassant au chauffage

Les lettres M et V qualifient le comportement des espaces interfoliaires de ces illites en voie d'ouverture. Ce sont des comportements semblables à ceux des espaces interfoliaires de la montmorillonite et de la vermiculite. Il ne s'agit pas ici de minéraux interstratifiés I-M ou I-V.

La figure 60 montre que la capacité de gonflement de l'illite ouverte décroît du haut vers le bas du forage : $I_M \rightarrow I_{MV} \rightarrow I_V \rightarrow I$.

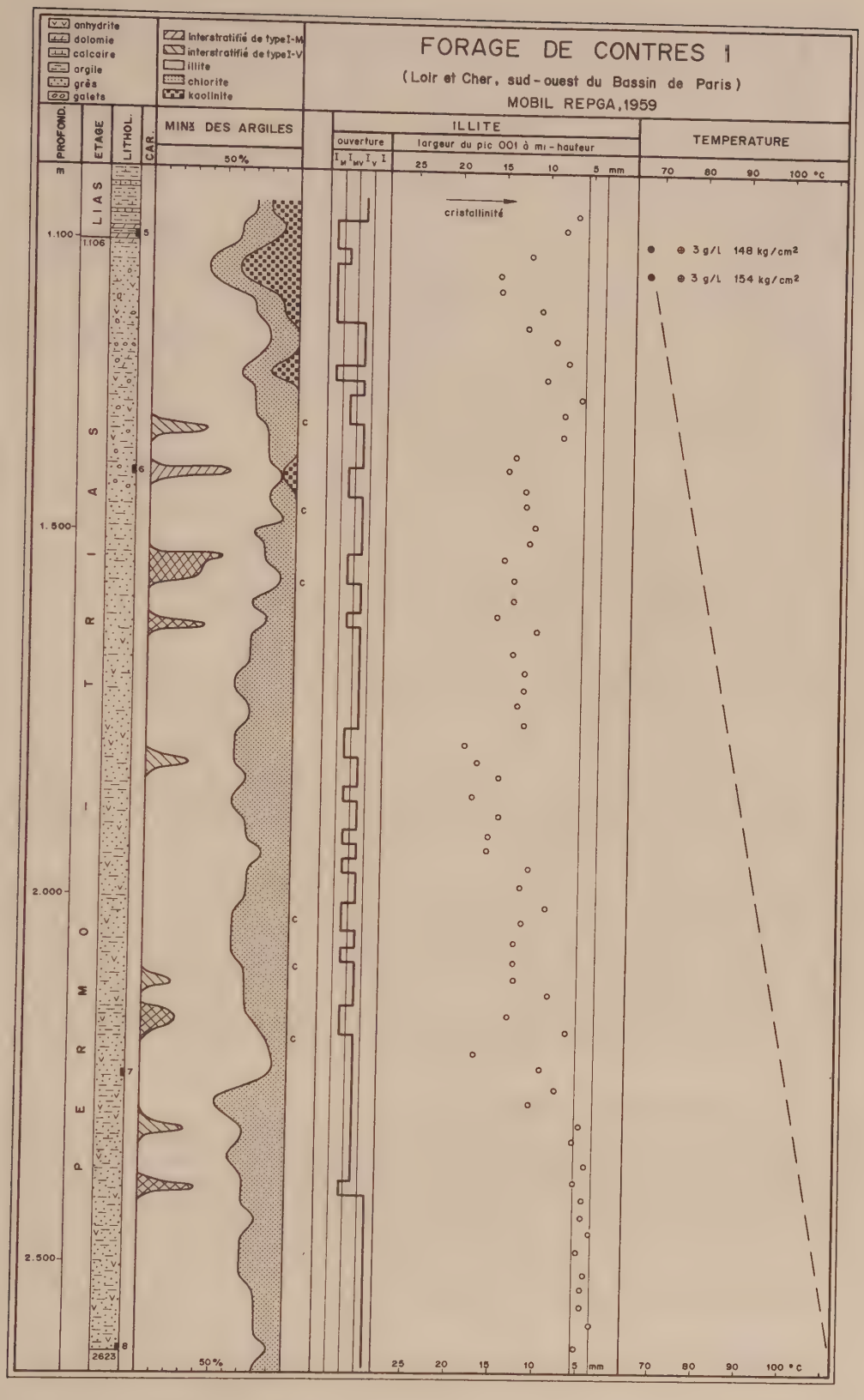


Fig. 60 - Forage de Contres. Analyses minéralogiques.

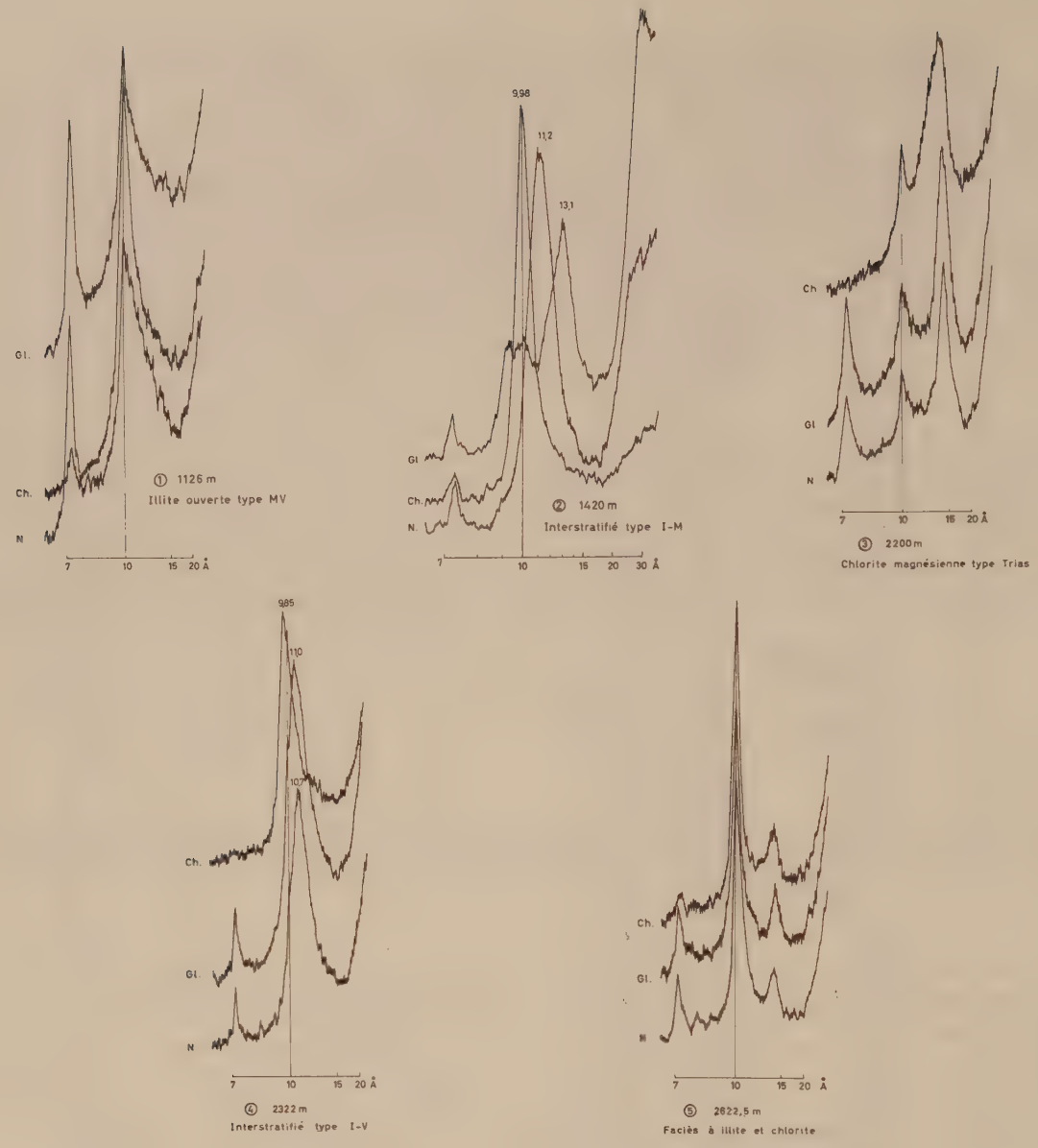


Fig. 61 - Forage de Contres. Minéraux argileux caractéristiques.

Relation entre cristallinité et constitution chimique

La répartition des points sur la figure 62 permet de retrouver les fortes cristallinités de la base du forage. Elle montre que le rapport d'intensité des pics 002 et 001 varie entre des limites assez étroites (0,23 à 0,35). Cela veut dire que la constitution chimique des couches octaédriques est assez constante le long de la série, c'est-à-dire que les roches-mères de l'illite, et les conditions d'altération et de sédimentation sont restées constantes elles aussi durant le Permo-Trias. Selon ESQUEVIN, les séries à interstratifiés I-M offrent, comme ici, un rapport I(002)/I(001) assez constant pour une cristallinité variable. Il faut remarquer enfin que les illites à forte cristallinité ont un rapport I(002)/I(001) supérieur ou égal à 0,28.

2 - Les interstratifiés

Il se développe de temps à autre, le long de la série, des édifices interstratifiés irréguliers (fig. 60). Ils ont un pic de base situé vers 11 Å et généralement bien défini. Tous se tassent à 10 Å après chauffage à 490° C pendant 4 heures. Certains gonflent au glycol (fig. 61, n° 2), d'autres

pas du tout (fig. 61, n° 4) ; tous les intermédiaires s'observent. Ils ont été classés ici en deux groupes nommés simplement I-M (interstratifiés gonflants) et I-V (interstratifiés non gonflants). L'empiètement des deux figurés sur la fig. 60 indique sommairement la présence de types intermédiaires.

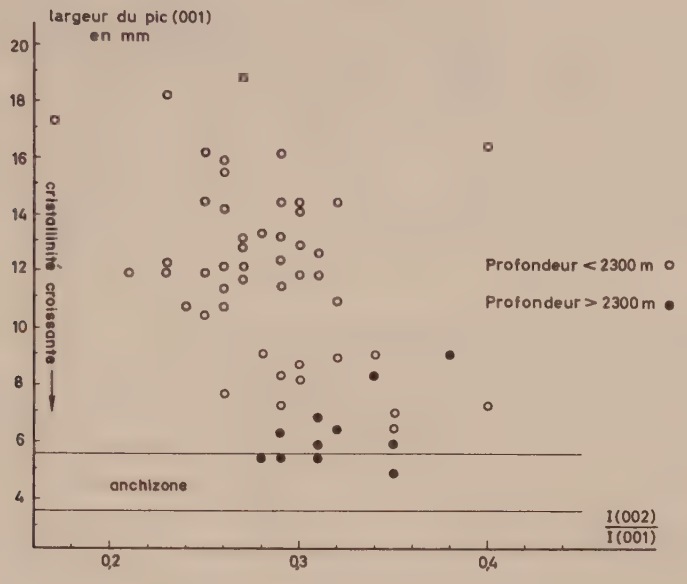


Fig. 62 - Forage de Contres. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

3 - La chlorite

Elle constitue un élément permanent de la fraction argileuse (fig. 60). Ses caractères sont ceux qu'on retrouve habituellement dans les séries détritiques : pic à 14 Å mal formé, instabilité au chauffage.

Sur ce fond continu de chlorite se détache une chlorite d'un type particulier (fig. 61, n° 3). On l'observe à six reprises dans la série où sa présence est signalée par la lettre C sur la figure 60. C'est une de ces chlorites dont les pics d'ordre pair sont très marqués, et qui sont classiques dans la sédimentation marine au Trias (LUCAS, 1962). Ce sont des chlorites riches en magnésium, de grande taille, résultant de la transformation et de l'agradation d'argiles détritiques dans le milieu de sédimentation. On peut voir ici dans la présence sporadique de telles chlorites, l'annonce du milieu marin triasique dans un bassin probablement continental, comme la plupart des bassins du Permo-trias en bordure de la chaîne hercynienne.

4 - La kaolinite

Les argilites rouges du Permien ne sont habituellement pas riches en kaolinite. Ici, toutefois, l'absence de kaolinite est définitive au-dessous de 1 500 m de profondeur. Cette disparition peut être mise sur le compte de la diagenèse d'enfouissement qui provoque systématiquement la décomposition de la kaolinite. La température maximale atteinte ici par la kaolinite est de 80°C.

III - DONNEES CHIMIQUES

La fraction inférieure à 2 µ a été analysée dans la zone où se réalise le faciès "illite-chlorite" de la diagenèse profonde, c'est-à-dire essentiellement entre 2 400 et 2 600 m.

Tableau XX

CONTRES. Composition chimique d'associations argileuses à illite et chlorite

Profondeur	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	Perte à 1 000°C	Somme
2241,25	50,6	24,8	2,8	< 0,2	12,4	0,067	0,88	0,51	6,09	5,69	103,77
2406	56,6	22,7	3,5	< 0,2	6,5	0,048	0,47	0,57	5,10	6,37	101,69
2450	51,5	23,7	4,0	< 0,2	8,7	0,064	0,81	1,00	5,18	5,79	100,74
2484	53,6	23,6	4,1	0,3	8,2	0,063	0,62	0,91	5,22	6,30	102,96
2524	51,3	24,1	4,0	0,3	9,4	0,063	0,76	0,94	5,17	5,91	101,95
2566	54,1	22,7	3,4	0,3	8,8	0,055	0,75	1,48	4,71	5,43	102,18
2610	50,6	25,0	3,6	< 0,2	9,1	0,069	0,82	0,61	6,00	6,38	102,06
2650,5	49,8	25,5	3,3	< 0,2	9,3	0,071	0,81	0,59	6,24	5,73	101,30

Les données du tableau XX appellent quelques remarques.

- La somme des oxydes est systématiquement supérieure à 100. Cela est dû au fait qu'on a disposé de très peu de matière pour faire l'analyse. La faible quantité de matière a entraîné un léger surbroyage qui s'est traduit par un léger gain d'intensité des raies diffractées.

- La composition chimique est remarquablement constante.

- Cette composition pourrait être celle d'une illite pure, ce qui implique que, dans la diagenèse profonde (faciès "illite-chlorite"), les illites, riches en fer et en magnésium, ne sont pas très éloignées chimiquement des chlorites, plus ferreuses que magnésiennes.

IV - CONCLUSION

Le forage de Contres a traversé une épaisse série détritique permo-triasique soumise, depuis son dépôt, aux conditions de la diagenèse d'enfouissement.

Les principaux indices de cette diagenèse sont les suivants :

- disparition de la kaolinite

- développement d'interstratifiés

- fermeture progressive de l'illite suivant le schéma $I_M \rightarrow I_V \rightarrow I$

- à la base de la série, amélioration de la cristallinité de l'illite et réalisation du faciès "illite-chlorite" dont la composition chimique est précisée.

CHAPITRE IX

LE FORAGE D'ADAMSWILLER (ALSACE)

Ce forage a été exécuté en 1958 par la Société de Prospection Pétrolière en Alsace (PREPA). Il avait pour objet la recherche de magasins ou de pièges stratigraphiques possibles dans la bordure sud-est du bassin houiller de Sarre et de Lorraine. Il n'a rencontré que de faibles indices d'huile dans la partie supérieure de Permo-carbonifère.

Un carottage régulier a permis d'échantillonner la série permo-houillère et d'en analyser la fraction argileuse. Les résultats sont groupés sur la figure 63.

La lithologie est très constante au dessous du conglomérat qui marque la base du "Grès bigarré" à 490 m de profondeur. Sur près de 1 500 m d'épaisseur, à travers le Permien et le Permo-carbonifère, ce sont des argilites finement gréseuses, très indurées, fissiles, de couleur rouge foncé, parfois grises. Il y a quelques veines de charbon entre 1 500 et 1 750 m de profondeur. Le socle est constitué par des gneiss et des quartzites micacés.

I - LE PERMIEN

Les minéraux argileux dans le Permien sont l'illite, très dominante, accompagnée d'interstratifiés illite-montmorillonite et d'un peu de chlorite.

II - LE PERMO-CARBONIFERE

Avec le Permo-carbonifère apparaît aux côtés de l'illite et de l'illite-montmorillonite une quantité importante de kaolinite et de dickite. La présence de kaolinite n'a rien de surprenant dans une série houillère (MILLOT, 1964, p. 192), mais celle de la dickite est inhabituelle.

III - LA DICKITE

C'est par l'étude en lame mince que la dickite a été repérée dans les schistes rouges d'Adamswiller. Elle y présente l'habitus classique de la dickite néoformée dans les faciès gréso-pélitiques, en éventails de larges cristaux atteignant 30 μ. De plus, la dickite se concentre le long des fines fractures qui parcourent la masse de ces argilites silteuses. Elle est alors visible à l'oeil nu, formant une trame blanchâtre qui se détache bien sur le fond rouge de la roche. La diffraction des rayons X a confirmé l'appartenance du minéral au groupe de la dickite, tout comme à Logbaba (voir fig. 16). On reviendra plus loin sur l'interprétation qu'on peut donner de la cristallisation de la dickite dans la diagenèse d'enfouissement.

IV - L'ILLITE

Trois paramètres ont permis de préciser la nature de l'illite (fig. 64).

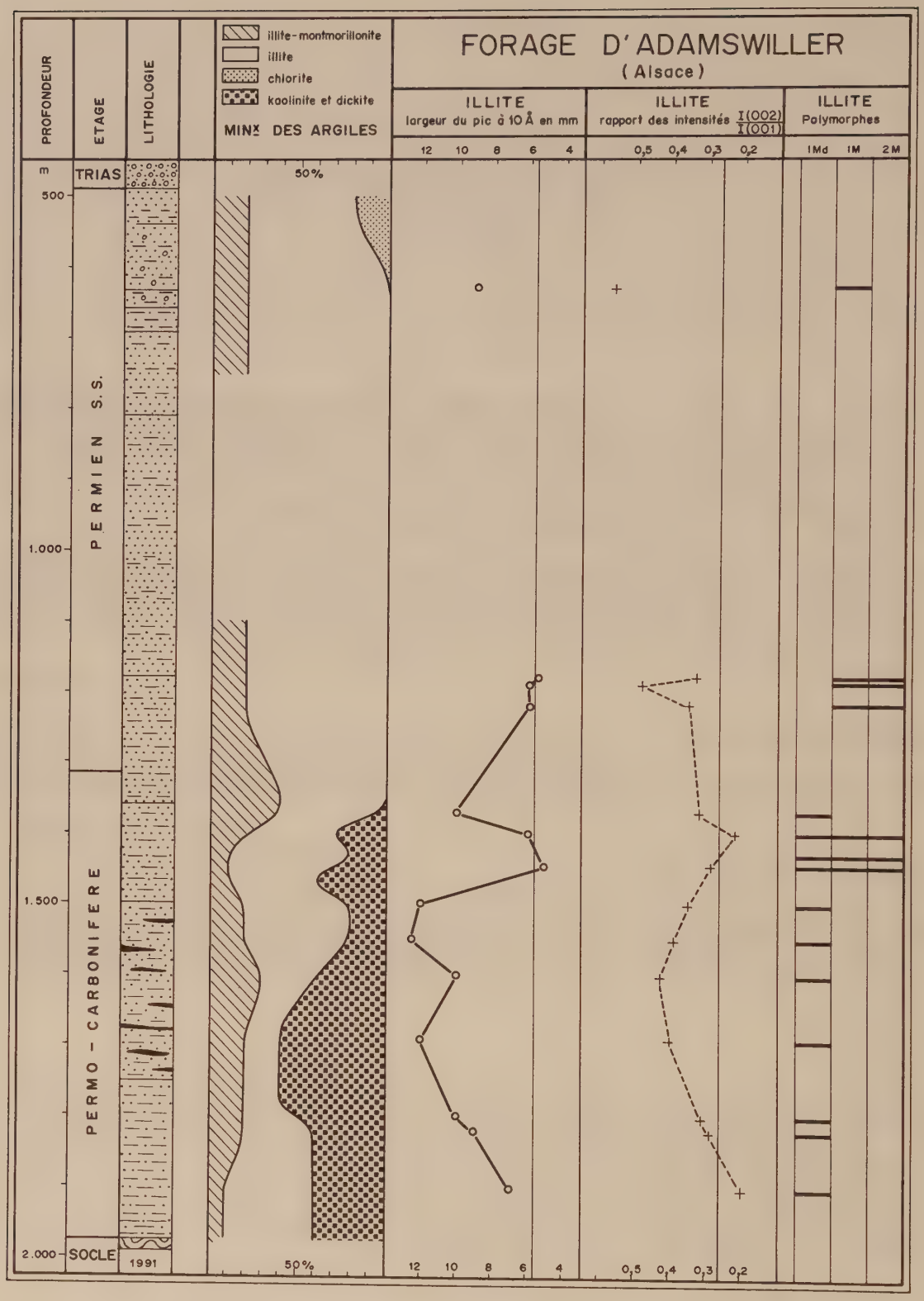


Fig. 63 - Forage d'Adamswiller. Analyses minéralogiques.

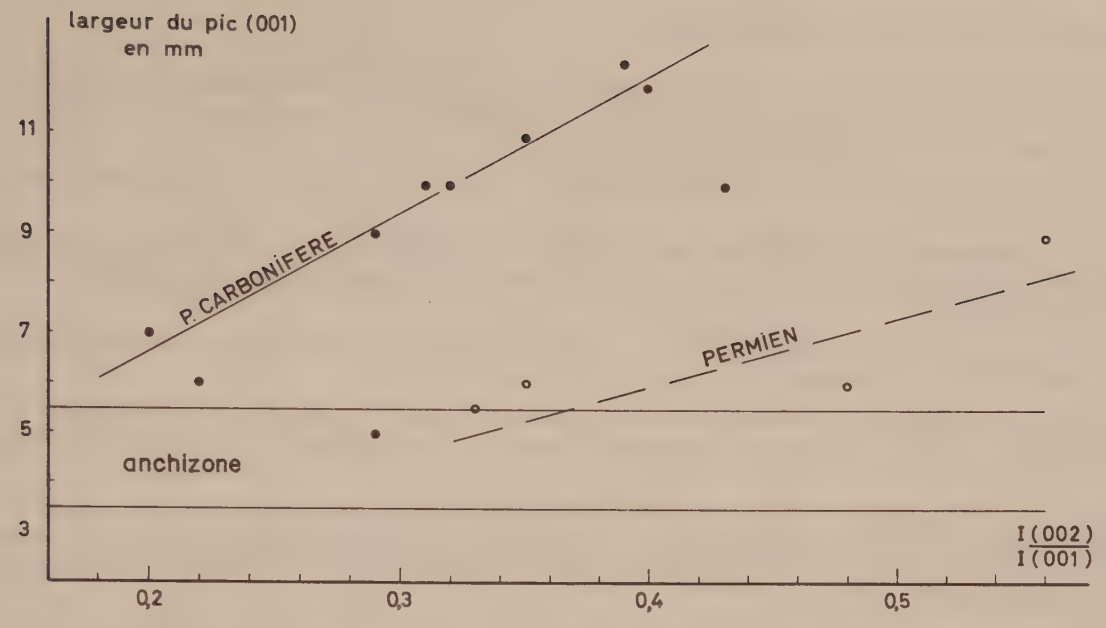


Fig. 64 - Forage d'Adamswiller. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

1 - La largeur du pic à 10 Å

Elle est fonction inverse de la cristallinité. Celle-ci augmente légèrement à la base du Carbonifère.

2 - Le rapport d'intensité des pics à 5 Å et 10 Å

Il tend à diminuer du haut en bas de la série traduisant ainsi le passage d'illites de type alumineux à des illites de type magnésien.

La corrélation entre ces deux paramètres, déjà visible sur la figure 63, a été détaillée sur la fig. 64. On constate que les pentes des droites de corrélation pour le Permien et le Permo-carbonifère sont très voisines. Cela veut dire que le degré de recristallisation diagénétique de l'illite est du même ordre dans les deux étages, ce qui est bien normal puisque les conditions d'enfouissement sont les mêmes. En revanche, la cristallinité moyenne du Permien est plus forte que celle du Permo-carbonifère. Il faut y voir une différence dans la qualité de l'illite livrée à la sédimentation. Les phénomènes d'altération continentale devaient être plus poussés dans le Carbonifère, tandis qu'au cours du Permien l'illite détritique était plus proche des micas, plus cristalline. On trouve une confirmation de cette idée

a) dans l'étude des lames minces, où l'abondance et la fraîcheur des micas détritiques est plus grande dans le Permien ;

b) dans l'analyse des polymorphes de l'illite.

3 - Les polymorphes

Déterminés selon la méthode décrite page 50, ils se répartissent comme l'indique la figure 63.

Les illites du Permien sont des fragments de micas, possédant les structures habituelles des micas, 1M ou 2M. Le Permo-carbonifère offre essentiellement le type 1Md, structure désordonnée, caractéristique des illites ouvertes qui ont recristallisé dans la zone de diagenèse.

V - RESUME ET CONCLUSION PARTIELLE

- Une série permo-carbonifère constituée d'argilites gréseuses est enfouie entre les profondeurs de 490 et 1 974 m. Elle a d'ailleurs subi un enfouissement beaucoup plus important avant la surrection et l'érosion des Vosges au Tertiaire.

- Les températures actuelles au fond, déduites d'un gradient géothermique moyen, vont de 40 à 70°C.

- Des phénomènes tectoniques non négligeables ont affecté la série. Les pendages atteignent 30°. Les argiles ont acquis une compaction très élevée ; elles sont parcourues de "sliken sides" et de microfractures.

- Le Permien, franchement détritique, est fait essentiellement d'illite à cristallinité assez forte, de type 1M et 2M, associée à un peu de chlorite.

- Le Permo-carbonifère présente une illite moins cristalline, de type essentiellement 1Md, et des minéraux kaoliniques. Au sein de ceux-ci, la dickite est largement cristallisée, tapissant les fractures de la roche.

- L'analyse des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969) fait apparaître une recristallisation diagénétique de même intensité pour le Permien et le Permo-carbonifère. Mais le niveau de départ est différent, les illites du Permien étant moins dégradées. Ce dernier fait peut s'expliquer en considérant :

que l'érosion était plus vive au Permien comme en témoigne l'abondance des grès, et donc que l'altération continentale ne trouvait guère le temps de s'exercer ;

que l'érosion post-hercynienne a attaqué d'abord la couverture sédimentaire des massifs avant de découvrir les zones métamorphisées et granitisées, qui fourniront des micas de bonne cristallinité ;

que les bassins permiens réalisent un milieu plus confiné, donc plus agradant, que les bassins carbonifères.

En définitive, on est en présence d'une série détritique, où les minéraux argileux ont enregistré trois évènements marquants :

1 - Une variation sédimentologique du Carbonifère au Permien se traduisant par la disparition de la kaolinite, l'amélioration de la cristallinité de l'illite et son passage du type 1Md aux types 1M et 2M.

2 - Une recristallisation diagénétique uniforme exprimée par la corrélation cristallinité-intensité des raies de l'illite.

3 - Une dickitisation dans les zones de fracture, s'apparentant à une action de type hydrothermal (voir V° partie, chap. 1).

CHAPITRE X

LES « TERRES NOIRES » JURASSIQUES DANS LE SUD-OUEST DES ALPES FRANÇAISES

Il s'agit d'une formation essentiellement argileuse, de couleur gris à noir, couvrant le Bajocien supérieur, le Bathonien, le Callovien et l'Oxfordien inférieur. Le bassin de sédimentation des terres noires a fait l'objet d'une thèse, actuellement en cours de rédaction (P. ARTRU). Diverses notes permettent déjà de connaître les grands traits du bassin (ARTRU, 1967, 1968 ; ARTRU et GAUTHIER, 1968).

L'évolution diagénétique des minéraux argileux et la recristallisation de ceux-ci sous l'influence du métamorphisme alpin ont été déjà abordés (DUNOYER, ARTRU et FERRERO, 1965; ARTRU, DUNOYER, COMBAZ et GIRAUD, 1969). De nouveaux éléments ont permis d'élargir ces premiers résultats : ce sont des études palynologiques et chimiques d'une part, et l'accès à certains forages profonds qui ont traversé la formation des terres noires d'autre part.

Je présenterai d'abord l'ensemble des données concernant la coupe de terrain réalisée d'ouest en est, et je donnerai ensuite les résultats se rapportant à quatre forages.

I - UNE COUPE EST-OUEST EN DIRECTION DE L'ARC ALPIN

L'échantillonnage a été fait en 1962 avec la collaboration de P. ARTRU. La minéralogie des argiles a apporté aussitôt d'utiles indications sur les transformations postsédimentaires en direction de la chaîne alpine (DUNOYER, ARTRU et FERRERO, 1965). Il a paru intéressant de confirmer ces résultats et de les élargir en faisant appel à d'autres techniques. C'est ainsi qu'a été faite l'étude microscopique des restes organiques au Laboratoire de la Compagnie Française des Pétroles à Bordeaux par A. COMBAZ, ainsi que l'analyse par pyrolyse et chromatographie du kérogène par A. GIRAUD de la Compagnie Française des Pétroles également. L'ensemble des résultats obtenus fait l'objet d'une note (ARTRU, DUNOYER, COMBAZ et GIRAUD, 1969) dont je donnerai ici l'essentiel.

1 - Les minéraux des argiles (fig. 65)

a) La kaolinite et la chlorite

On observe une disparition de la kaolinite vers l'est entre Veynes et Gap. Il est logique de la mettre sur le compte du métamorphisme alpin, puisqu'on a déjà vu qu'une simple diagenèse d'enfouissement provoquait une instabilité de la kaolinite. Mais les recherches sédimentologiques d'ARTRU ont montré que cette absence de kaolinite était due essentiellement à l'effet de barrière d'une "dorsale dauphinoise", ligne de haut-fond séparant le bassin de Die de celui de Gap, et limitant dans ce dernier les apports de kaolinite d'origine continentale (ARTRU, 1968).

Il paraît actuellement bien établi qu'au Jurassique les parties émergées du Massif Central fournissaient de la kaolinite et des solutions riches en silice. Il s'agissait de reliefs très arrasés, soumis à une altération de type latéritique (ARTRU et GAUTHIER, 1968; DELFAUD et GAUTHIER, 1968).

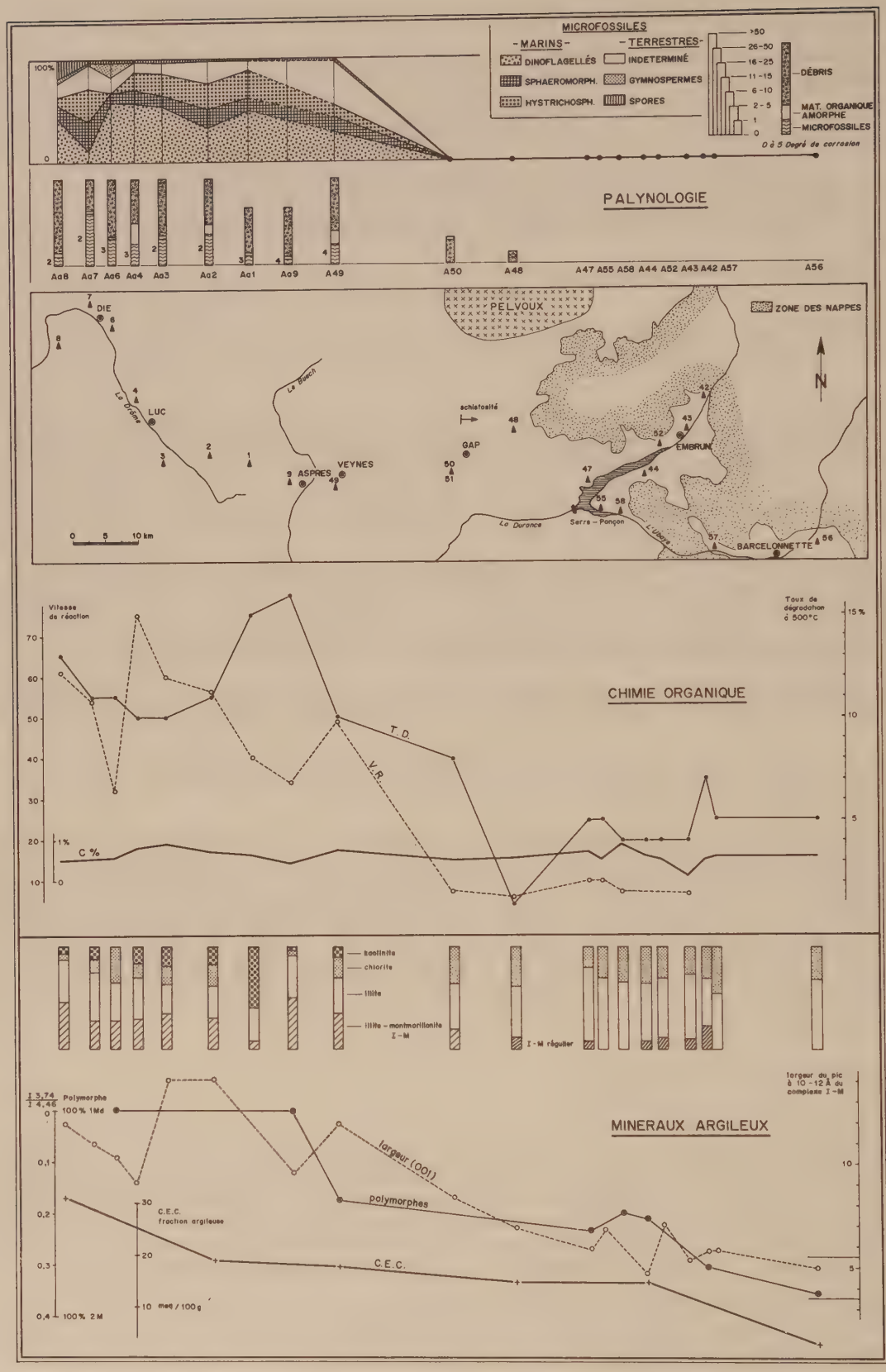


Fig. 65 - Coupe à travers les "terres noires" jurassiques du bassin de la Durance. Données micropaléontologiques, minéralogiques et géochimiques.

Il n'est donc pas exclu que l'absence de kaolinite dans la région de Gap soit due à des conditions sédimentologiques. Il faut cependant ajouter que les conditions thermodynamiques qui ont régné à Embrun ou à Barcelonnette n'auraient pas permis à la kaolinite de se maintenir dans cette partie de la coupe.

b) L'illite

Elle constitue un élément permanent, qui devient dominant dans la zone orientale. A l'ouest, elle présente une certaine proportion d'interfoliaires gonflants, constituant des édifices interstratifiés illite-montmorillonite.

Certains paramètres cristallographiques sont très constants. C'est le cas pour d(001) qui ne varie qu'entre 9,92 et 10,11 Å, et pour d(060) entre 1,497 et 1,500 Å.

La détermination du type polymorphe a été faite en mesurant l'intensité des pics (023) à 3,74 Å, bien développé dans le type 2M, nul pour 1Md, et (110, 11$\bar{1}$) à 4,46 Å, commun aux deux types. Les types 1M et 3T n'ont pas été observés. Le développement du type 2M vers l'ouest est manifeste (fig. 65). Il passe de 0 à 90 %, traduisant une recristallisation dans des conditions thermiques de plus en plus élevées (MAXWELL et HOWER, 1967).

L'étude de l'illite selon la méthode d'ESQUEVIN (1969) permet de saisir une double évolution dans la cristallinité et dans la composition chimique (fig. 66).

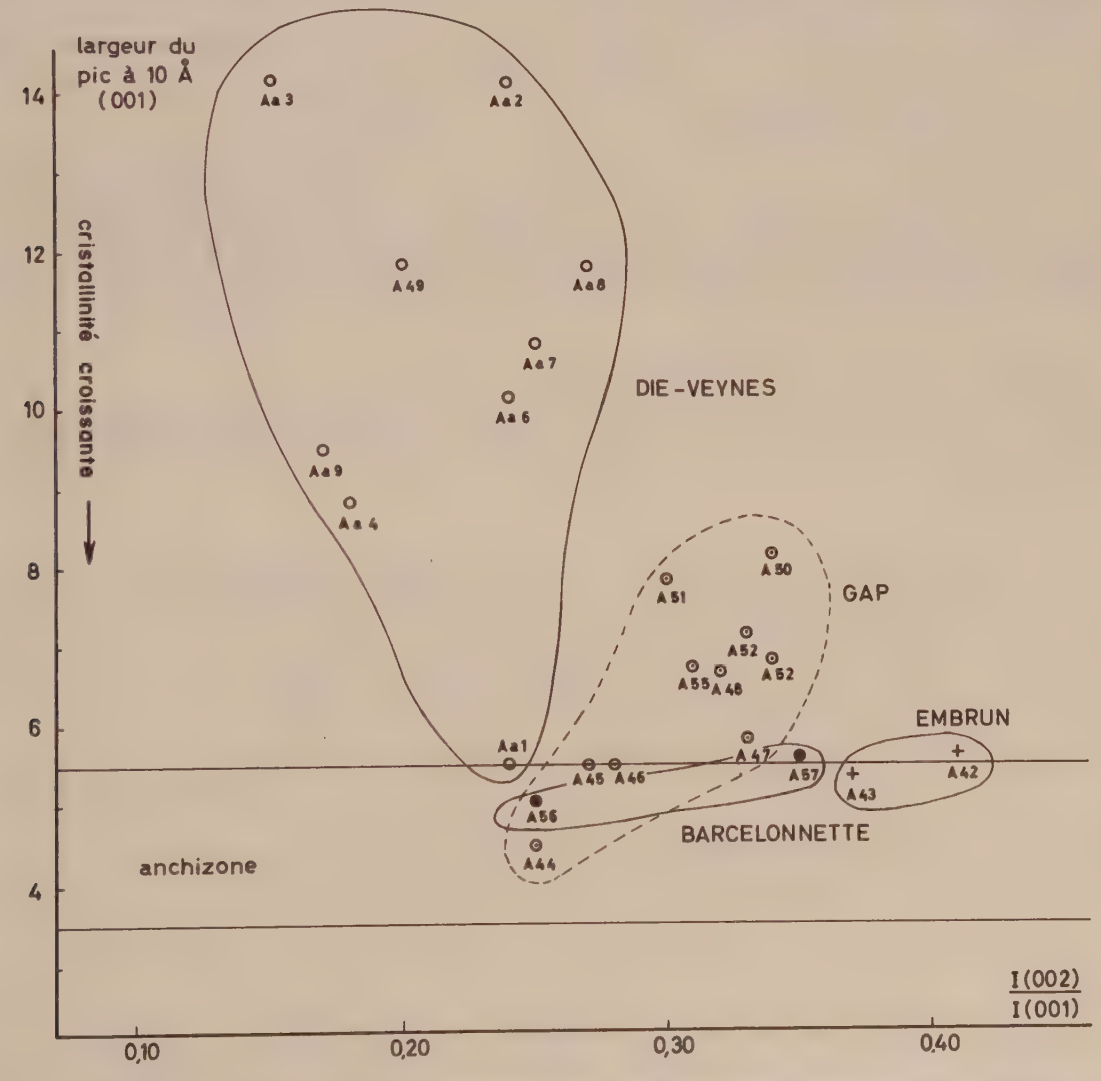


Fig. 66 - "Terres noires" jurassiques. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

- La zone occidentale Die-Veynes présente une cristallinité faible et variable, et un rapport I(002)/I(001) de 0,2, ce qui indique une certaine importance du magnésium dans la couche octaédrique.

- La zone centrale Gap-Serre Ponçon voit la cristallinité augmenter sensiblement et les octaèdres s'enrichir en aluminium.

- Les deux zones orientales, celle d'Embrun et celle de Barcelonnette, présentent des cristallinités qui sont déjà celles de l'anchizone.

c) Les interstratifiés illite-montmorillonite

Ce sont des interstratifiés irréguliers à l'ouest de Gap. Leur capacité de gonflement est variable.

A l'est de Gap, en revanche, l'interstratification est régulière. La position des pics est celle de l'allevardite (24,7 - 12,4 - 3,10 Å).

On reviendra sur ce type de recristallisation déjà observé dans le forage d'Assejmi.

Il semble qu'on ait là une structure d'équilibre, correspondant à certaines conditions thermodynamiques, réalisées dans une diagenèse d'enfouissement ou sur le pourtour d'une épizone.

2 - Les données de la chimie minérale

Deux séries de mesures ont été faites pour tenter de recouper les transformations minéralogiques qu'on vient de décrire.

a) Capacité d'échange cationique

Elle a été mesurée sur la roche totale (tableau XXI). Les chiffres indiquent des valeurs fortes et constantes pour S, dues au caractère toujours calcaire des terres noires. La capacité d'échange décroît régulièrement d'ouest en est. La teneur en argile étant de 50 % environ, il faut multiplier les chiffres par 2 pour avoir la capacité d'échange de l'argile elle-même (fig. 65). On retrouve ici la liaison entre capacité d'échange et capacité de gonflement, telle qu'on a pu la mettre en évidence à Logbaba (fig. 19).

b) Composition chimique de la fraction argileuse

L'examen du tableau XXII montre que les changements minéralogiques interviennent de façon topochimique, sans que la composition chimique globale de la fraction argileuse soit affectée.

Tableau XXI

TERRES NOIRES. Capacité d'échange cationique (T) de la roche totale en meq/100 g. Somme des cations solubles (S) en meq/100 g. (Analyste M. HETIER, Centre de Pédologie CNRS de Nancy)

	K^+	Na^+	Ca^{+2}	Mg^{+2}	S	T
Aa 8	1,0	0	56	2,5	59,5	15,5
Aa 2	1,6	0	50	5,5	57,1	9
A 49	1,1	0,1	50	1,1	52,3	8
A 48	1,0	0,1	44	7,8	52,9	7
A 44	1,2	0,1	49	2,5	52,8	7
A 56	1,1	0	46	2,1	49,2	3,2

Tableau XXII

TERRES NOIRES. Composition chimique de la fraction argileuse, inférieure à 2 µ

	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Somme
Aa 6	53,8	24,5	2,5	< 0,2	6,2	0,029	0,80	0,23	5,00	7,49	95,37
Aa 9	51,5	27,9	1,7	< 0,2	7,4	0,026	0,62	0,38	4,20	8,05	97,15
A 49	55,3	25,7	1,8	0,3	3,6	0,034	0,74	0,41	3,62	8,58	96,02
A 47	48,9	34,2	1,0	< 0,2	2,0	0,045	1,84	1,85	4,55	8,13	96,09
A 58	49,8	29,4	1,7	< 0,2	4,8	0,030	1,57	1,07	6,40	7,44	94,95
A 44	47,6	32,4	1,8	< 0,2	2,6	0,035	1,60	0,94	6,00	7,57	93,59
A 42	47,9	33,6	1,3	< 0,2	2,2	0,045	1,53	0,51	5,73	8,17	94,78
A 56	58,0	26,6	2,4	< 0,2	2,3	0,024	0,95	0,63	4,75	6,76	97,06

3 - L'observation microscopique (Planche II)

a) Examen en lame mince

Il a permis de controler le faciès, assez constant. Les principales variations portent sur la teneur en carbonate. Mais il a permis surtout de suivre la recristallisation de ce matériel argilo-quartzeux et calcaire.

A partir de Gap se développe une schistosité de fracture, qui devient très importante au delà de Serre-Ponçon. Si les tensions jouent un rôle dans la recristallisation des minéraux phylliteux, elles ont pu s'exercer ici pleinement.

b) Microscopie électronique

La recristallisation des argiles, et en particulier celle de l'illite, se traduit par des changements morphologiques observables au microscope électronique. Les photographies de la planche II montrent l'aspect des minéraux argileux à l'ouest (Aa 6) et à l'est (A 56). La taille augmente, les contours se précisent, les surfaces se nettoient. Aa 6 offre l'image classique d'une illite sédimentaire ; A 56 se présente déjà comme un mica.

4 - Transformations diagénétiques des débris organiques

La technique d'extraction de ces débris a été exposée ailleurs (ARTRU, COMBAZ, DUNOYER et GIRAUD, 1969). Leur examen au microscope fait apparaître trois constituants principaux (tableau XXIII et fig. 65).

a) Analyse microscopique des constituants

Microfossiles

Ce sont surtout des Dinoflagellés (ou Péridiniens) dans la proportion de 60 à 90 % de la population totale. Leur taille varie de 30 à 120µ environ. Ils comprennent notamment les genres Ctenidodinium sp., Gonyaulacysta spp., Scriniodinium crystallinum (DEFL.) KLEM. 1957, cf. Hystrichodinium sp., Dingodinium spp., Wanea clathrata COOKS. et EIS. 1958.

A côté d'eux s'observent quelques Sphaeromorphitae incertae sedis, des Hystrichosphères telles que Hystrichosphaeridium sp., Hystrichosphaera sp., Cannosphaeropsis sp., avec de rares Micrhystridium spp.

D'autres microfossiles intéressants, bien que peu nombreux, illustrent encore ce microbios. Ce sont surtout des Pollens disaccates de Gymnospermes et de très rares Spores trilètes, dont le genre Cyathidites.

Enfin apparaissent de temps à autre des microforaminifères spiralés.

Débris végétaux

C'est le matériel organique le plus abondant, principalement ligneux. Ils se présentent sous forme de fragments plus ou moins polygonaux, allongés, noirs. De temps à autre apparaissent quelques fibres aréolées. Les débris de cuticule sont rares.

Matière organique amorphe

Elle est pratiquement absente, sauf dans les échantillons Aa 4 (10 %) et Aa 2 (5 %), où on la remarque, dispersée, entre les éléments figurés.

Tableau XXIII

Fossiles et débris organiques dans les "terres noires".

Echantillon	Constituants M %	D %	MO %	Dinoflagel. %	Sphaerom. %	Hystrix. %	Pollens Gymnosp. %	Spores %	Microforam. %	Couleur des microfossiles (1)	Etat des microfossil. (1)
Aa 8	20	80	ε	63	17	2	10	7	1	2	2-3
Aa 7	60	40	ε	73	19	4	2	1	1	2	2-3
Aa 6	20	80	ε	91	1	6	-	2	-	3	2-3
Aa 4	25	65	10	87	3	9	-	1	-	3	2-3
Aa 3	35	65	ε	84	3	11	-	1	1	3	3
Aa 2	35	60	5	80	9	9	1	1	-	3-4	2-3
Aa 1	30	70	ε	85	8	7	-	-	-	3-4	3-9
Aa 9	20	80	-	25 (2)	-	-	1 (2)	-	-	4	3-9
A 49	25	75	ε	93	6	-	1	-	-	4	9-10
A 50	10	90	-	4 (2)	-	-	-	-	-	4	9-10
A 48	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 47	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 55	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 58	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 44	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 52	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 43	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 42	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 57	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A 56	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
RL926 (3)	25	770	5	45	22	4	15	12	2	1-2	

(1) Echelles conventionnelles

Echelle des couleurs

1 - jaune clair
2 - jaune foncé
3 - marron clair
4 - marron foncé

Echelle des états de dégradation

1 - homogène
2 - inclusions pyriteuses
3 - corrosion
9 - dislocation
10 - destructuration

(2) Ces valeurs ne sont pas des pourcentages, mais le nombre des organismes comptés dans une lame.

(3) Echantillon témoin provenant de la vallée du Rhône (région de Valence)

b) Indications stratigraphiques

Les échantillons fossilifères étudiés paraissent situés entre des limites stratigraphiques relativement étroites, si l'on en juge par la constance de la composition du microbios observé.

Il est toutefois malaisé d'apporter une précision plus grande que Bathonien à Callovien.

c) Interprétation paléogéographique

Le milieu marin ne fait aucun doute. Toutefois, il est intéressant de noter à côté des éléments planctoniques in situ (Dinoflagellés) la constance et l'abondance du matériel bio-détritique organique, sans doute en grande partie terrestre, constitué par les débris végétaux.

Quant aux microfossiles terrestres proprement dits, les pollens et les spores, ils se cantonnent pratiquement dans les échantillons les plus occidentaux. On a analysé un échantillon de même âge en provenance de la vallée du Rhône (région de Valence). Il a fourni un pourcentage sensiblement plus élevé (27 %) de pollens et de spores. Ainsi est-il probable que le continent fournissant

les microfossiles terrestres se situait à l'ouest de la zone alpine. Les Sphaeromorphitae, considérés comme des indicateurs de milieu côtier (COMBAZ, 1964), sont eux aussi en sensible augmentation (22 %) par rapport à la vallée de la Drôme. Les microforaminifères ne représentent encore que 2 %.

d) Evolution diagénétique

Les microfossiles

Ils disparaissent à l'est de Gap. Cette disparition est précédée de changements progressifs, particulièrement bien observables sur les Dinoflagellés. Ce sont, en allant de Die vers Gap :

- un changement de coloration depuis les teintes jaune-ambré jusqu'au brun ;

- une altération et une dislocation de la structure qui, de fine et délicate, devient confuse et fantômatique.

Les débris végétaux

A l'ouest de la coupe, ils sont déjà noirs, mais avec quelques plages brunes. Dans la partie centrale (Gap), leur couleur est uniformément noire, leur allongement moyen moindre, et leur silhouette plus émoussée. De plus, ils sont beaucoup moins nombreux. A l'est de Gap, ils sont pratiquement absents.

C'est donc une disparition des microfossiles et des débris végétaux qu'on observe d'ouest en est, accompagnée d'une carbonification progressive (fig. 65).

5 - Etude de la matière organique par pyrolyse et chromatographie

a) Préparation des échantillons

La roche, grossièrement broyée, est lavée dans des extracteurs de Soxhlet, en présence de chloroforme, pendant environ 30 jours. Ce lavage a pour but de séparer la totalité des matières organiques solubles dans le chloroforme, du résidu insoluble complexe appelé kérogène.

La roche est ensuite séchée, puis broyée finement.

b) Résultats analytiques

La matière organique est analysée par pyrolyse et chromatographie, suivant la méthode décrite par BORDENAVE, COMBAZ et GIRAUD (1966).

L'ensemble des résultats est consigné dans le tableau XXIV, où figurent successivement :

- la teneur en kérogène, exprimée en % de carbone,

- le taux de dégradation à 500°C (TD 500), défini par le pourcentage du kérogène (exprimé en carbone) éliminé par pyrolyse pendant 10 minutes à 500°C,

- les potentiels en gaz, huile et composés aromatiques.

L'interprétation quantitative des chromatogrammes obtenus lors d'une pyrolyse à 280°C nous permet d'estimer un "potentiel en gaz" par addition des quantités de méthane, éthane et propane rapportées à la quantité de kérogène (exprimée en carbone) mise en oeuvre. De la même façon, la somme des n-paraffines comprises entre C_4 et C_{11} permet de chiffrer un "potentiel en huile". Le "potentiel en aromates" enfin, est obtenu en groupant benzène, toluène, xylène, cumène, xylénol.

c) Interprétation des résultats (fig. 65)

La teneur en matière organique insoluble (kérogène) reste pratiquement constante. Cette teneur est faible, inférieure à 1 %, malgré la teinte sombre de la roche. Celle-ci est due principalement à la présence de pyrite très finement divisée.

Parmi les paramètres mesurés il en est deux qui montrent une variation importante le long de la coupe : le taux de dégradation et la vitesse de réaction.

Variations du taux de dégradation

Il est de l'ordre de 10 % dans la zone ouest et tombe aux environs de 5 % à l'est de Gap. Un taux de 10 % correspond à une dégradation naturelle déjà importante, comparable à celle qui a été observée dans le Gothlandien au nord du Sahara (BORDENAVE et al., 1966). Un taux de 5 %

est le signe d'une dégradation naturelle vraiment très importante. On a donc là un paramètre qui exprime l'intensité des dégradations postsédimentaires, dont la relation avec les phénomènes diagénétiques ou métamorphiques est évidente.

Tableau XXIV

Constitution chimique de la matière organique des Terres Noires

Echantillon	C % roche totale	TD % 10 mn 500°C	POTENTIEL			Vitesse de réaction %	Observations
			Gaz %	Huile %	Aromat. %		
Aa 8	0,50	13	0,06	0,02	traces	61	
Aa 7	0,52	11	0,05	0,01	0,005	55	
Aa 6	0,56	11	0,03	0,005	traces	32	
Aa 4	0,82	10	0,04	0,03	0,005	75	
Aa 3	0,93	10	0,04	0,02	traces	60	
Aa 2	0,73	11	0,05	0,007	0,005	56	
Aa 1	0,65	15	0,03	0,03	traces	40	
Aa 9	0,44	16	0,05	0,005	traces	34	
A 49	0,77	10	0,05	traces	traces	50	Pollution. Présence de bitumes
A 50	0,54	8	0,005	0,001	traces	7,5	
A 48	0,58	0,9	0,005	traces	traces	5,6	Pollution. Présence de bitumes
A 47	0,74	5	0,005	traces	traces	10	
A 55	0,53	5	0,005	traces	traces	10	Pollution. Présence de bitumes
A 58	0,93	4	0,001	0,003	traces	10	
A 44	0,62	4	0,003	traces	traces	7,5	
A 52	0,55	4	traces	traces	traces	-	
A 43	0,15	4	traces	traces	traces	-	
A 42	0,55	7	0,005	traces	traces	7,1	
A 57	0,62	5	traces	traces	traces	-	
A 56	0,62	5	traces	traces	traces	-	

Variations de la vitesse de réaction

La vitesse de réaction, caractérisée par le rapport TD 280/TD 500, est influencée par le niveau de dégradation naturelle. Elle va donc subir elle aussi une diminution importante vers l'est. Mais elle est influencée également par le caractère marin ou continental de la matière organique. Le milieu marin sera caractérisé par un rapport potentiel en huile/potentiel en aromatiques plus élevé que le milieu continental. C'est ainsi que l'échantillon Aa 4, qui présente la plus forte vitesse de réaction, est également celui dont le potentiel en huile est le plus élevé. Il est donc probable que si l'on poursuivait la coupe vers l'ouest en direction du continent, on assisterait à une diminution de la vitesse de réaction.

En conclusion, l'analyse par pyrolyse et chromatographie de la matière organique insoluble a permis de déceler deux paramètres, dont la variation est attribuable à un gradient diagénétique d'ouest en est. Ce sont :

- le taux de dégradation à 500°C (TD 500),
- la vitesse de réaction (TD 280/TD 500).

Ils diminuent tous deux d'ouest en est avec une diagenèse croissante (fig. 65).

II - LE FORAGE D'AUREL AL 1

Implanté sur la bordure nord-est du Dôme d'Aurel, dans le Diois (fig. 67), ce forage a traversé le Jurassique moyen, puis une épaisse série schisteuse du Lias supérieur. Il a donné de nombreux indices de gaz (CO_2 et CH_4).

L'étude de la fraction argileuse de cette série marneuse fait apparaître des variations verticales (fig. 68). Certaines peuvent être attribuées à la diagenèse d'enfouissement. Ce sont :

- la régression des interfoliaires gonflants montmorillonitiques,
- la dispartition de la kaolinite,
- une légère augmentation de la cristallinité de l'illite entre 0 et 1 900 m.

Fig. 67 - Bassin de sédimentation des "terres noires". Situation des forages étudiés.

La cristallinité nettement plus forte, qu'on note ici dans le Lias au-dessous de 1 900 m, se retrouve dans de nombreux autres forages. Il semble qu'il y ait des raisons sédimentologiques pour que l'illite fournie aux bassins à cette époque ait été particulièrement peu altérée.

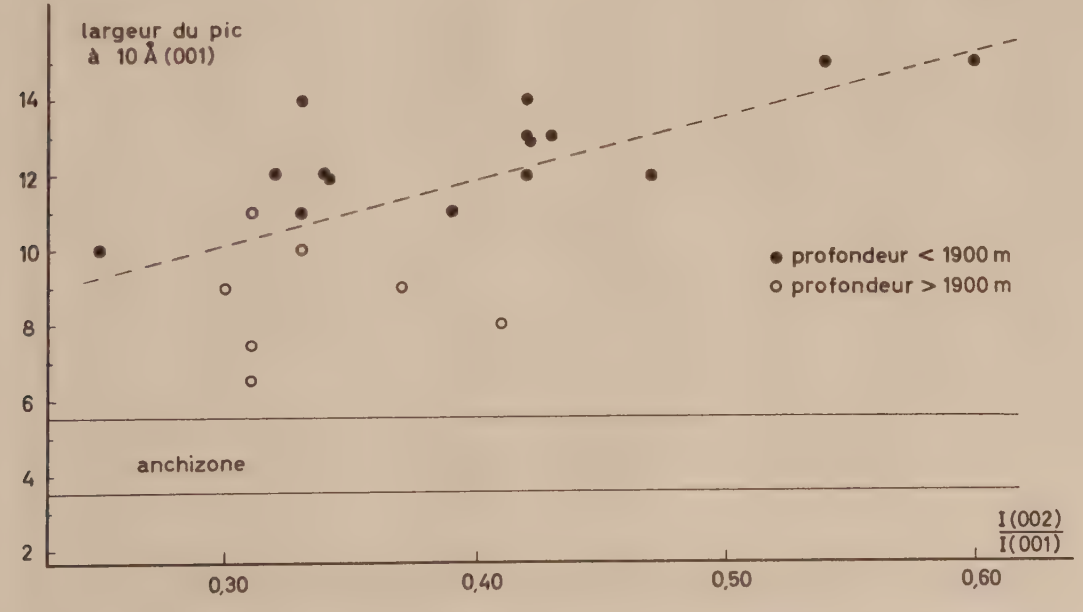


Fig. 69 - Forage d'Aurel. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

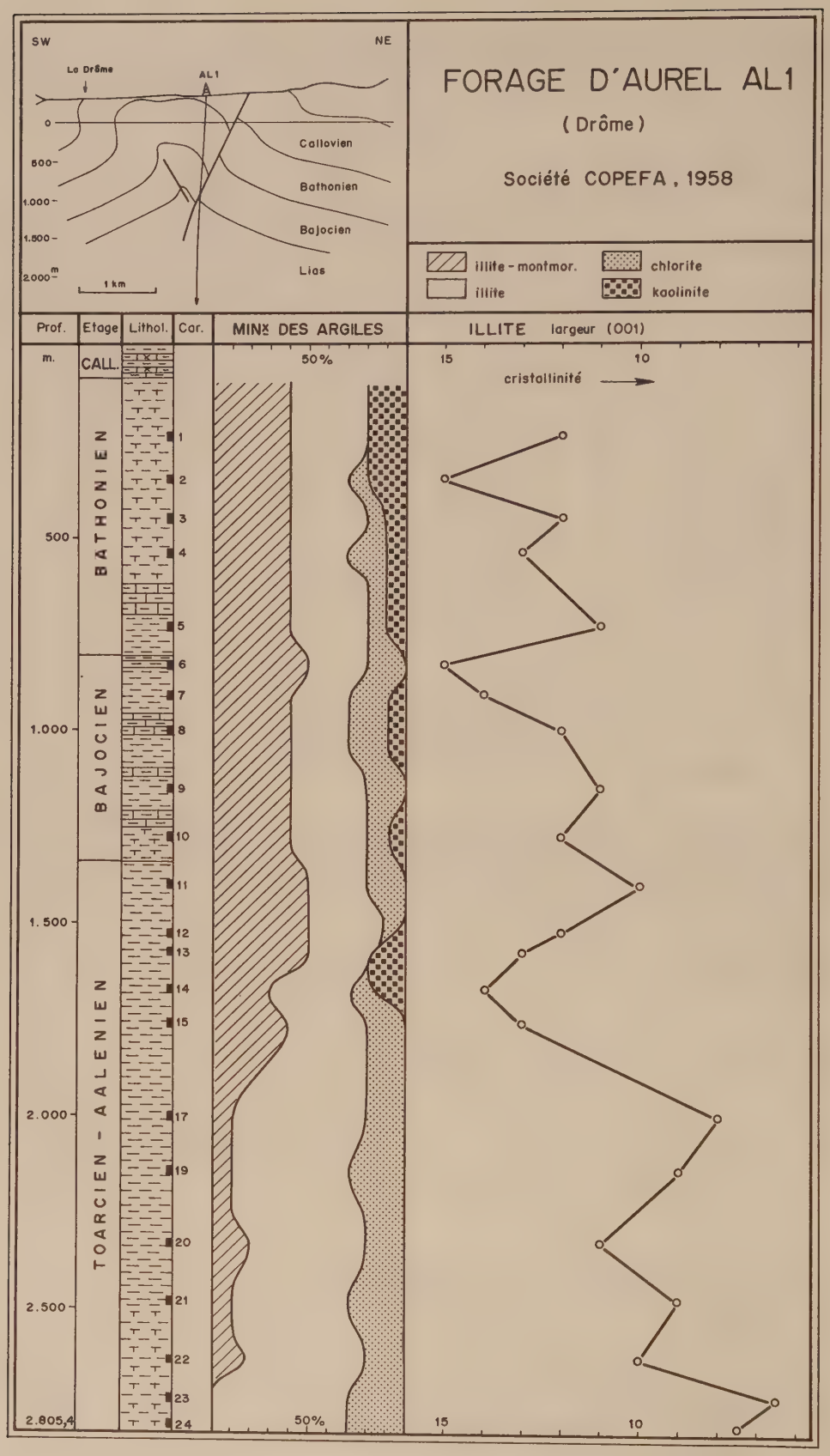


Fig. 68 - Forage d'Aurel. Analyses minéralogiques.

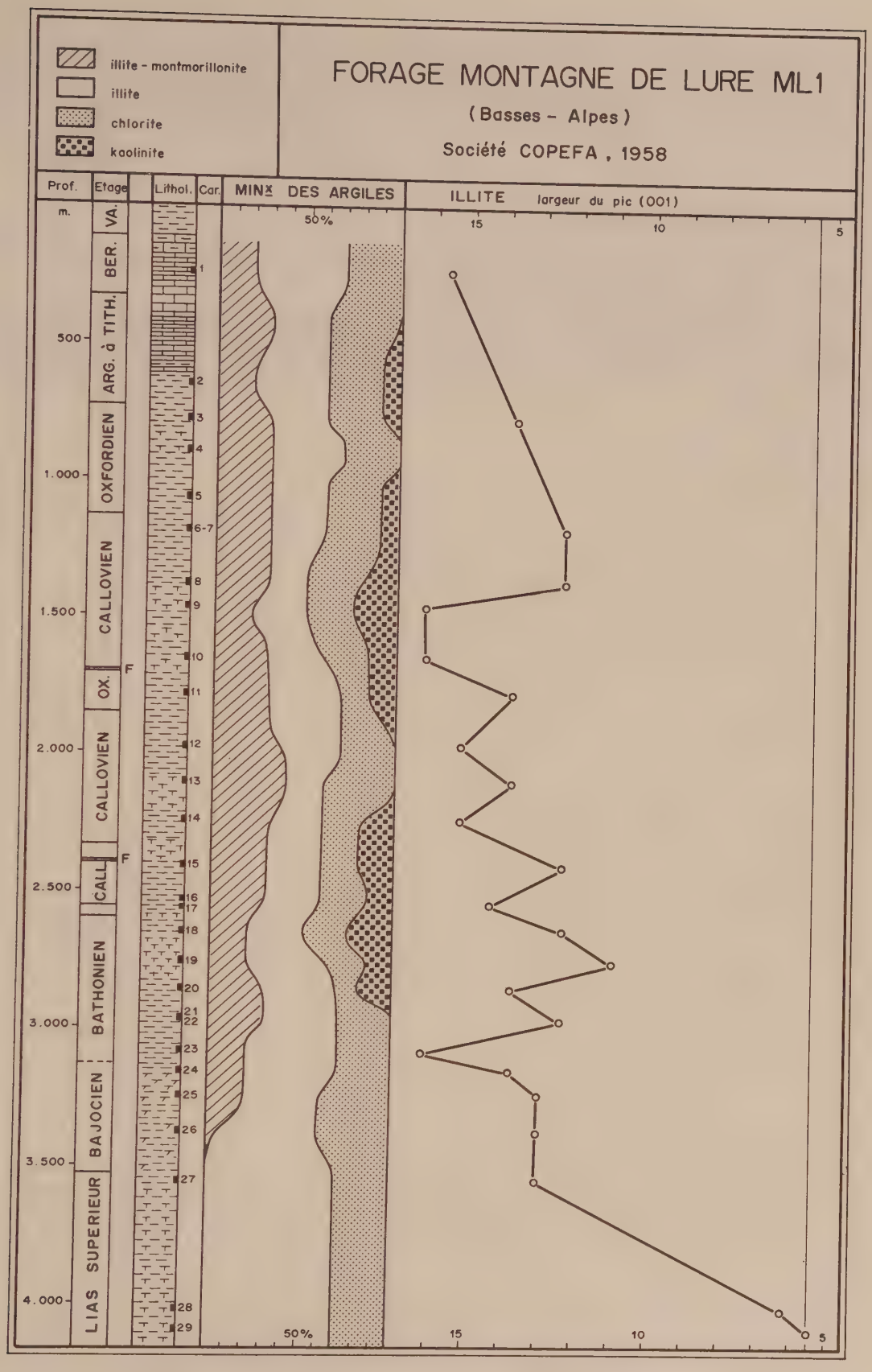


Fig. 70 - Forage de Montagne de Lure. Analyses minéralogiques.

La diagenèse d'enfouissement est cependant effective ainsi qu'en témoigne la figure 69. Si on ne tient pas compte de la zone liasique à cristallinité plus élevée, gisant ici à des profondeurs supérieures à 1 900 m, on voit apparaître une corrélation linéaire entre les deux paramètres de l'illite utilisés. On sait qu'une telle figure est l'indice de recristallisations diagénétiques (ESQUEVIN, 1969).

III - LE FORAGE DE MONTAGNE DE LURE ML 1

Celui-ci a été situé au sud de l'axe anticlinal Ventoux-Lure, à 2 km 500 de la faille frontale de ce grand accident chevauchant vers le nord (fig. 67).

La répartition verticale des minéraux argileux (fig. 70) est très voisine de celle qu'on vient de décrire dans le forage d'Aurel : même régression de la montmorillonite et de la kaolinite, même augmentation de la cristallinité de l'illite, même originalité du Lias. La figure 71 indique que le gradient de diagenèse (pente de la droite de corrélation) est le même dans les deux forages.

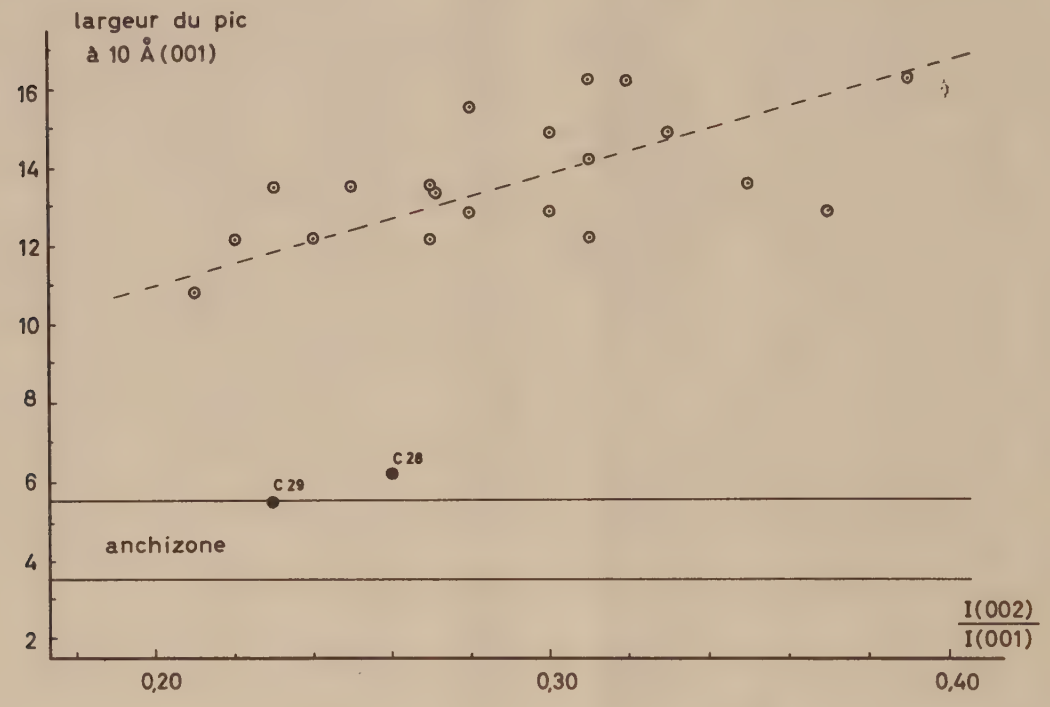


Fig. 71 - Forage de la Montagne de Lure. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

IV - LE FORAGE DE GRAND LUBERON GL 1

Ce forage a recoupé le flanc nord de l'anticlinal faillé du Luberon (fig. 67). La série jurassique, plus riche en calcaires que dans les forages précédents, a été échantillonnée entre 3 000 et 5 000 m de profondeur. Malgré cette grande profondeur, l'évolution des minéraux argileux est faible. Les interstratifiés gonflants se maintiennent jusqu'à la base, mais ils régressent légèrement. Corrélativement, l'agradation de l'illite est manifeste. Le Lias moyen garde son caractère particulier (fig. 72 et 73).

On a fait l'analyse chimique de la fraction inférieure à 2µ, décarbonatée par HCl, saturée par $CaCl_2$. L'agradation des minéraux argileux, de l'illite en particulier, ne s'y traduit pas. La composition chimique de la fraction argileuse est même remarquablement constante, sur tous les éléments dosés. Il y a donc des transformations minéralogiques fines, décelables par la

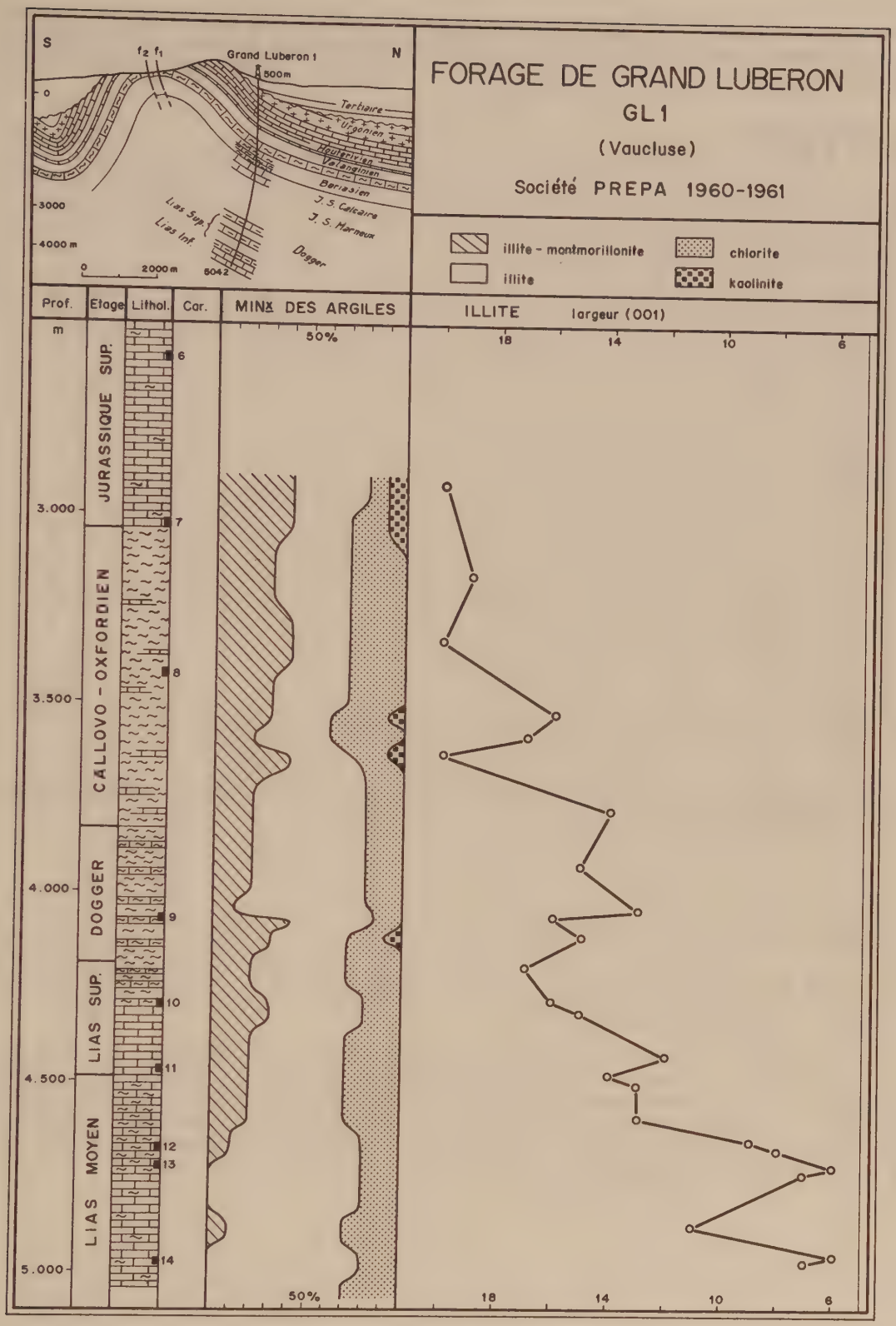


Fig. 72 - Forage de Grand Luberon. Analyses minéralogiques.

radiocristallographie, indécelables par l'analyse chimique globale. Les réactions sont topochimiques en ce qui concerne la fraction argileuse. Cela ne veut pas dire qu'elles soient réellement topochimiques, puisqu'une des phases réactionnelles est inconnue : la solution interstitielle.

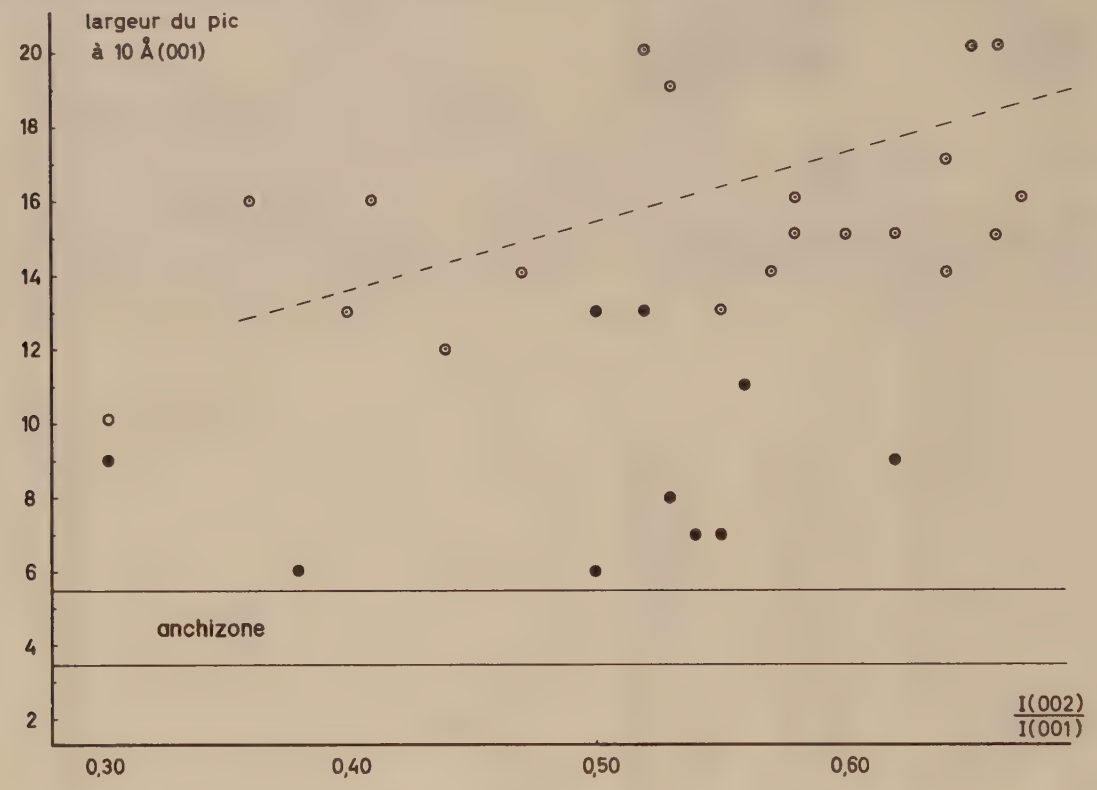


Fig. 73 - Forage du Grand Luberon. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).
En ronds pleins : Lias moyen.

V - LE FORAGE DE PONT DE MIRABEAU PdM 1

Les "terres noires", faciès marno-calcaire du Callovo-oxfordien, ont été rencontrées dans le forage entre 700 et 1 200 m de profondeur, alors qu'elles gisent entre 3 000 et 3 800 m dans le forage voisin de GRAND LUBERON (fig. 67).

La série traversée fait partie d'une zone paléogéographique très différente de celle de Grand Luberon ou de Montagne de Lure. C'est le prolongement de la "dorsale dauphinoise" (ARTRU, 1967), ou tout au moins une zone relativement peu subsidente au Jurassique. Il y avait là des conditions de sédimentation où l'apport détritique devait dominer, fournissant de la kaolinite et des micas détritiques. Ainsi s'explique sans doute la plus grande abondance de kaolinite et la bonne cristallinité des micas à Pont de Mirabeau (fig. 74 et 75).

Tableau XXV

Forage de Grand Luberon. Composition chimique de la fraction inférieure à 2 μ décarbonatée, saturée au chlorure de calcium

Profondeur	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Somme
2910 m	49,8	26,7	2,2	0,7	5,1	0,036	0,89	0,42	5,05	9,10	100,04
3030	49,5	26,5	2,0	0,8	7,0	0,037	0,99	0,29	5,07	7,53	99,81
3160	48,6	25,6	2,5	0,7	6,3	0,034	0,89	0,38	5,15	9,23	99,47
3320	49,3	26,4	2,5	0,6	6,3	0,039	0,99	0,46	5,21	7,89	99,70
3492	50,9	26,8	2,3	0,6	6,6	0,039	1,09	0,42	4,93	7,70	101,49
3536	49,8	27,9	2,1	0,7	4,9	0,032	0,93	0,55	5,23	8,04	100,22
3580	51,7	27,3	2,1	0,6	5,4	0,032	1,09	0,46	4,79	7,98	101,50
3632	52,8	27,3	1,6	0,6	4,4	0,029	0,97	0,54	4,32	9,42	102,06
3784	57,0	22,4	1,5	0,5	4,1	0,026	1,04	0,68	4,02	9,12	100,40
3928	55,8	23,2	1,6	0,5	4,2	0,043	0,98	0,75	3,94	9,37	100,46
4066	54,1	23,8	1,7	0,5	4,1	0,029	1,32	0,81	3,66	10,39	100,52
4074	51,6	29,1	1,8	0,7	4,0	0,032	0,92	0,74	4,79	8,52	102,28
4096	54,1	25,6	1,7	0,5	4,3	0,029	1,13	0,76	4,46	8,78	101,45
4100	53,4	25,6	1,8	0,5	4,7	0,029	1,13	0,77	4,29	8,97	101,30
4200	56,3	24,4	1,6	0,5	4,0	0,026	0,91	0,74	4,07	8,42	101,08
4293	62,5	21,6	1,6	0,4	2,6	0,024	0,78	0,76	3,22	7,86	101,19
4301	57,9	24,8	1,8	0,5	2,9	0,026	0,80	0,70	3,52	8,47	101,57
4432	55,8	21,4	1,7	0,5	4,6	0,032	1,04	0,86	3,37	10,43	99,75
4474	56,1	24,9	1,7	0,5	3,4	0,026	0,79	0,69	3,88	9,60	101,59
4478	55,9	23,3	1,6	0,4	3,0	0,023	0,75	0,72	4,63	9,87	99,18
4588	57,3	22,0	1,6	0,5	3,4	0,025	0,91	0,82	3,67	9,41	99,63
4667	55,0	27,1	2,2	0,6	2,5	0,026	0,87	0,73	4,59	9,21	102,95
4670	58,4	22,6	1,7	0,4	2,2	0,018	0,66	0,75	4,22	8,13	99,03
4721	53,8	26,8	1,8	0,4	2,1	0,024	0,69	0,67	4,89	8,02	99,20
4725	51,8	28,6	2,3	0,5	2,4	0,025	0,81	0,77	4,98	9,35	101,50
4884	53,8	26,1	1,7	0,6	3,1	0,023	0,72	0,73	4,53	8,43	99,79
4978	65,1	18,8	1,2	0,2	2,1	0,018	0,69	0,70	4,07	7,33	100,19
4982	54,2	25,2	1,8	0,3	2,4	0,020	0,75	0,62	5,09	8,37	98,79
4996	55,1	25,6	1,7	0,6	3,5	0,023	0,77	0,64	4,63	8,19	100,75
5036	57,5	25,0	1,7	0,6	3,2	0,023	0,73	0,58	4,31	7,93	101,41

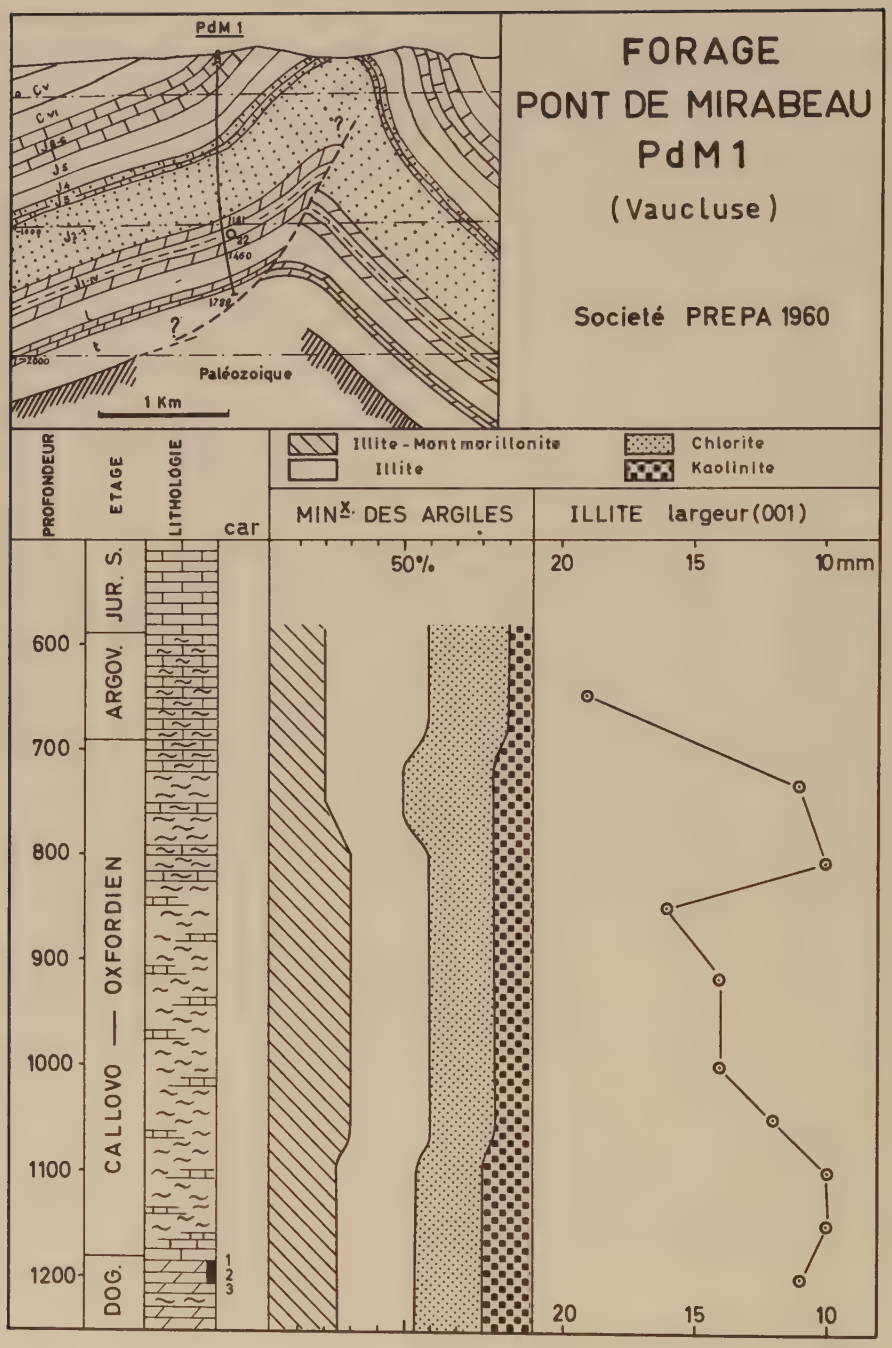


Fig. 74 - Forage de Pont de Mirabeau. Analyses minéralogiques.

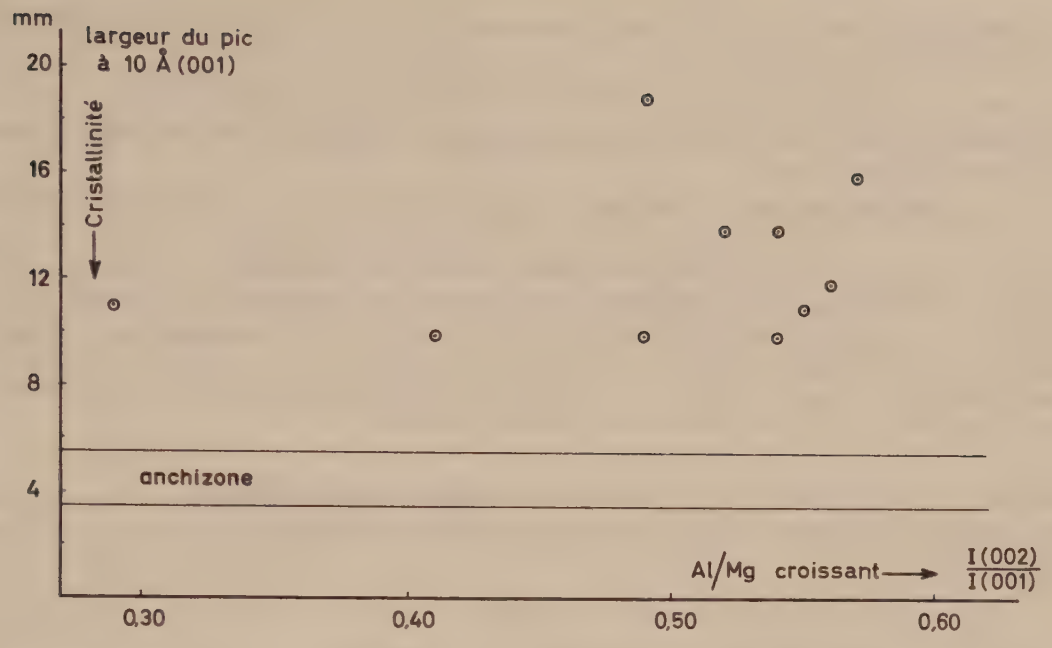


Fig. 75 - Forage de Pont de Mirabeau. Caractérisation des illites selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

VI - CONCLUSION GENERALE A L'ETUDE DES "TERRES NOIRES"

Le bassin de sédimentation des terres noires a fonctionné de façon complexe au Jurassique moyen et supérieur. Les travaux cités au début de ce chapitre, en particulier ceux de P. ARTRU, permettent de discerner la paléogéographie de cette aire de sédimentation, où bassins et seuils, voire terres émergées, se relayent en bordure d'un continent situé à l'ouest, sur l'emplacement de notre actuel Massif Central.

Malgré cette complexité paléogéographique, un lithofaciès très constant représente une période pouvant s'étendre, suivant les zones, depuis le Bajocien supérieur jusqu'à l'Oxfordien. Ce sont les "terres noires", marnes noires et marno-calcaires gris foncé se chargeant de calcaires marneux vers le sud.

Dans une formation aussi homogène dans son ensemble on a cherché les variations postsédimentaires en relation avec deux gradients.

- Un gradient horizontal : l'influence croissante du métamorphisme alpin en direction de la zone briançonnaise.

- Un gradient vertical : l'enfouissement.

1 - Transformations postsédimentaires liées à l'orogénèse alpine

Un grand nombre de techniques ont été mises en oeuvre pour rechercher les variations minéralogiques et chimiques subies par les terres noires jurassiques en bordure de l'arc alpin. On était en droit d'attendre de telles variations, car les terres noires offrent sur le terrain les traces évidentes d'une recristallisation et d'une schistosité de plus en plus marquées vers l'est. Les changements réguliers qu'on a pu observer d'ouest en est sont les suivants.

a) La kaolinite est totalement absente dans la région est.

b) Les minéraux argileux interstratifiés gonflants disparaissent en passant par un stade d'interstratification régulière, l'allevardite.

c) L'illite passe du type 1 Md au type 2M.

d) La cristallinité de l'illite augmente.

e) La composition chimique de la couche octaédrique de l'illite change légèrement dans le sens d'un rapport Al/Mg plus élevé.

f) La capacité d'échange cationique diminue fortement (de 30 à 5 meq/100 g).

g) La transformation d'illite en mica s'accompagne de changements morphologiques observables au microscope électronique.

h) Les microfossiles chitineux et les débris végétaux brunissent, se disloquent et disparaissent.

i) Le taux de dégradation par pyrolyse à 500°C du kérogène s'abaisse ainsi que la vitesse de cette réaction, ce qui indique que la dégradation naturelle a été beaucoup plus poussée à l'est.

Ces divers gradients ont été reportés sur la figure 65. Ils sont évidemment en relation avec les phénomènes liés à l'orogénie alpine. On pense en particulier à la surcharge crée par la mise en place des nappes de l'Embrunais et de l'Ubaye, ainsi qu'au métamorphisme alpin tout proche, dont on saisit peut-être ici les manifestations les plus externes.

2 - Transformations post-sédimentaires liées à la diagenèse d'enfouissement

a) Une diagenèse d'enfouissement a pu être décelée par forage.

b) Elle se traduit par

- une régression des interfoliaires gonflants,
- une régression, voire une disparition, de la kaolinite,
- une agradation de l'illite, dont la cristallinité s'améliore.

c) Cette diagenèse est légère. On peut chiffrer son intensité par la pente de la droite de corrélation "cristallinité-intensité relative de (002) et (001) de l'illite" (voir fig. 103). Le stade de recristallisation atteint est encore loin de l'anchizone.

d) Le niveau diagénétique est sans aucune relation avec les profondeurs d'enfouissement actuelles. Il faut donc admettre que cette diagenèse s'est effectuée avant le plissement des terrains. Elle devrait être sensiblement constante pour un niveau stratigraphique donné. C'est en effet ce que montre la cristallinité de l'illite, dont les indices restent compris entre 10 et 20 pour le Callovo-oxfordien, quelle que soit la profondeur actuelle d'enfouissement. Après quelques mouvements discrets au Cénomanien, c'est au Paléocène, puis à l'Oligocène, que se sont dessinés les plis majeurs de cette région. Du Jurassique moyen jusqu'au Paléocène, la diagenèse a donc disposé de 80 millions d'années pour s'exercer sur une série horizontale, soumise aux gradients thermiques, hydrostatiques et ioniques de l'enfouissement.

e) Les recristallisations de la diagenèse d'enfouissement sont sans commune mesure avec celles du métamorphisme alpin, décrites plus haut, dont l'intensité est beaucoup plus forte. Elles se distinguent donc aisément. Toutefois, il est certain que les échantillons situés à la limite d'influence du métamorphisme alpin, dans la région de Veynes, par exemple, ont subi une diagenèse d'enfouissement dont les effets sont alors très difficiles à démêler de ceux du métamorphisme.

CHAPITRE XI

LES CALCSCHISTES DU CRÉTACÉ SUPÉRIEUR DE LA ZONE BRIANÇONNAISE (ALPES OCCIDENTALES)

La zone du Briançonnais se signale par le caractère très mince et discontinu des sédiments jurassiques et crétacés. Au-dessus d'une puissante série triasique où se succèdent les quartzites, les argiles gypsifères, les calcaires et les dolomies, le Jurassique et le Crétacé présentent la succession suivante, de bas en haut :

Jurassique :

- Localement Rhétien et Hettangien calcaires, transgressifs sur le Trias moyen ou supérieur. Ailleurs, lacune de tout le Lias, avec sidérolitique.

- Brêches et calcaires à Mytilus du Dogger, transgressifs, ou, sur les hauts-fonds, lacune persistante.

- Calcaires pélagiques du Malm (Tithonique à Radiolaires, Calpionnelles, Aptychus) avec localement, à la base, des griottes (marbres de Guillestre) ou des calcaires gréseux (faciès de transgression sur le Trias inférieur dans la zone d'Acceglio).

Crétacé :

- Typiquement, lacune du Crétacé inférieur et moyen (Néocomien représenté dans quelques sillons).

- Calcschistes planctoniques à Globotruncana, dits aussi "marbres en plaquettes" ou "marbres chloriteux" du Sénonien, "transgressifs" en général sur le Malm par l'intermédiaire de fonds durcis phosphatés sous-marins (hard grounds), et se poursuivant dans le Paléocène (Globorotalia).

Les problèmes paléogéographiques et structuraux de la zone briançonnaise ont été mis au point récemment (BARBIER et al., 1960-1963).

Suivant le conseil de F. ELLENBERGER je me suis adressé à M. LEMOINE pour réaliser un échantillonage des marbres en plaquettes. Je remercie M. LEMOINE de m'avoir généreusement consacré son temps pour la recherche des affleurements.

I - L'ECHANTILLONNAGE

Les marbres en plaquettes offraient des qualités intéressantes pour la recherche des recristallisations métamorphiques des minéraux argileux :

- faciès calcschisteux où la teneur en argile est faible, mais assez constante, dans les limites de 10 à 30 %.

- faciès très homogène à l'intérieur de la zone briançonnaise.

Il s'agit de calcaires marneux en petits lits de 5 mm d'épaisseur moyenne, séparés par de très minces interlits argileux. La teinte est toujours claire, rouge ou vert pâle, les deux couleurs étant étroitement associées. Ces différences de coloration ne correspondent qu'à de faibles différences dans la teneur en fer et sont à attribuer plutôt à des degrés d'oxydation divers de ce fer à l'état très divisé (voir tableau XXIX p. 182).

- faciès d'extension régionale assez grande et facile à identifier sur le terrain.

- faciès soumis à des degrés de métamorphisme divers selon sa position structurale dans l'édifice alpin.

L'échantillonnage réalisé se rapporte à cinq zones différentes. Certaines sont mises en place sur la figure 76.

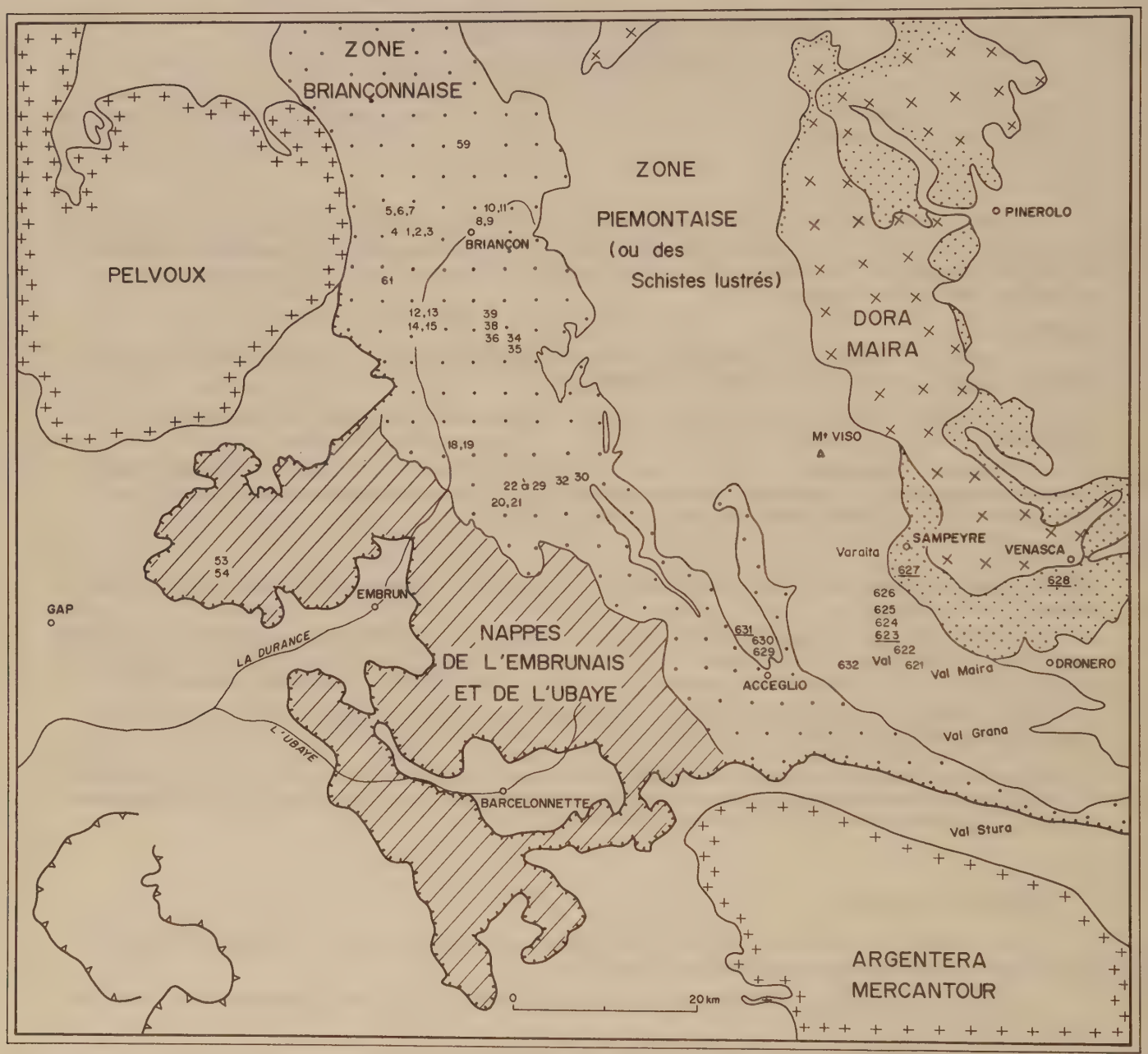


Fig. 76 - Esquisse géologique de la partie centrale des Alpes franco-italiennes. Les numéros sont ceux des échantillons de marbres en plaquettes dans la zone briançonnaise, des quartzites permiens (soulignés) et des schistes lustrés dans la zone piémontaise.

1 - La partie centrale du Briançonnais

Il s'agit de la haute vallée de la Durance, depuis les affleurements au nord de Briançon (Fort de l'Olive éch. 59, route de Montgenèvre éch. 8 à 11), en passant par les écailles de Serre-Chevalier (éch. 1 à 7), la tête du Sablier (éch. 61), la région de l'Argentière (éch. 12 à 15), de St Crépin (éch. 18 et 19), de Guillestre (éch. 20 et 21) et la basse vallée du Guil (éch. 22 à 29).

2 - La partie orientale du Briançonnais

On est à la limite du recouvrement par les schistes lustrés. Le métamorphisme est déjà sensible sur le terrain, où les calcschistes deviennent sonores sous le marteau, plus cohérents, plus riches en chlorite. Les marbres en plaquettes ont été prélevés dans la vallée du Cristillan (éch. 30 et 32), et dans la région du col de l'Izoard, à Clot-la-Cîme (éch. 34 et 35), au col des Ourdeis (éch. 36 et 38) et au col des Peygus (éch. 39).

3 - Les nappes de l'Embrunais

Des éléments des séries briançonnaises ont été entraînés par les nappes de flysch à Helminthoïdes à la base desquelles on les retrouve sous la forme d'un chapelet de klippes. Ils se sont trouvés ainsi en position relativement externe, et ont échappé aux actions métamorphiques des zones internes. Les échantillons 53 et 54 viennent des klippes de Chabrières, au dessus du village de Réallon.

4 - La zone métamorphique de Vanoise

Les niveaux calcschisteux du Crétacé supérieur-Paléogène s'y retrouvent sous forme de marbres verts chloriteux. Ils ont été décrits par ELLENBERGER (1958). C'est lui qui m'a communiqué ces marbres métamorphiques (éch. 103 à 107). Je le remercie beaucoup pour cette contribution.

Echantillon n° 103 Rocher du Châtel
104 Arête E du Petit Mont-Blanc
105 idem
106 Eglise de Pralognan
107 N de l'Iseran

5 - Les Préalpes fribourgeoises

Les nappes préalpines, celles du Chablais et celles de l'arc fribourgeois, comportent des éléments de la zone briançonnaise (Médianes Rigides) tout comme les nappes de l'Embrunais. Mais l'ampleur des charriages est ici telle, que ces éléments ont échappé totalement au métamorphisme alpin. Ils présentent une stratigraphie assez comparable à celle de la zone briançonnaise. Le Crétacé supérieur, en particulier, y est représenté par des calcschistes rouges ou gris, très proches des "marbres en plaquettes". Ils sont décrits sous le nom de "couches rouges". Je les ai échantillonnés entre Chateau d'Oex et l'Etivaz sur les indications d'A. LOMBARD. Ce sont les échantillons 100 et 101 (LOMBARD, 1967, fasc. 3, p. 184).

II - RESULTATS DES ANALYSES DE LABORATOIRE

Tous les échantillons ont été soumis au même traitement : broyage, décarbonatation par HCl N/10, séparation du résidu en diverses tranches granulométriques entre les limites 50, 10 et 2μ. Des lames minces ont été faites systématiquement pour contrôler le microfaciès et déceler d'éventuelles recristallisations de phyllites observables au microscope. Les minéraux phylliteux s'orientent dans les plans de schistosité, mais gardent une taille inférieure à 10μ, ce qui rend illusoire tout détermination optique. La phase carbonatée présente des structures de recristallisation identiques à celles décrites par d'ALBISSIN (1962-1963). Leur étude sort du cadre de ce travail mais pourrait le compléter utilement.

1 - Minéralogie de la fraction fine décarbonatée

Tous les échantillons analysés présentent, sans exception, l'unique association mica-chlorite, confirmant ainsi leur appartenance à des zones métamorphiques, ou, pour les plus externes, indiquant au moins une diagenèse assez poussée.

a) La chlorite

Elle forme de 10 à 20 % de la fraction fine. Très bien cristallisée, c'est une chlorite de type ferreux, comme le prouveront tout à l'heure les analyses chimiques, et comme l'indique déjà le rapport d'intensité des pics 001 et 002 :

$$\frac{I\ (001)}{I\ (002)} = 0,34 \text{ pour le Briançonnais}$$

Ce rapport passe à 0,42 pour les marbres de la Vanoise, traduisant un léger enrichissement en magnésium.

La mesure précise de d(001) donne les valeurs moyennes suivantes :

- 14,16 Å pour le Briançonnais
- 14,08 Å pour la Vanoise.

Les données bibliographiques compilées par BRINDLEY (1961) permettent d'approcher la composition chimique des chlorites par les paramètres cristallographiques que je viens de mesurer. Dans la formule synthétique

$$Mg_{6-x-y}\ Fe_y\ Al_x\ (Si_{4-x}\ Al_x)\ O_{10}\ (OH)_8$$

x est en relation avec d(001) suivant une loi linéaire exprimée par BRINDLEY. Dans le cas présent :

- pour le Briançonnais d(001) = 14,16 d'où x = 1,3
- pour la Vanoise d(001) = 14,08 d'où x = 1,6

y est en relation avec le rapport des facteurs de structure pour les raies (001). Dans le cas d'un diagramme de poudre, l'intensité I de la raie de diffraction est liée au facteur de structure F par la relation :

$$I = k\,.\,F^2\,\frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin\theta\ \sin 2\theta}$$

Pour la raie 001, $F(001) = 1,73\ \sqrt{I_{(001)}}$

Pour la raie 002, $F(002) = 3,46\ \sqrt{I_{(002)}}$

En reprenant les valeurs de I(001) et I(002) données plus haut, il vient

- pour le Briançonnais $\frac{F\ (001)}{F\ (002)} = 0,29$
- pour la Vanoise $\frac{F\ (001)}{F\ (002)} = 0,33$

Les tables données par BRINDLEY (1961) permettent alors de déterminer y.

- Briançonnais y = 3,5
- Vanoise y = 2,5

Les chlorites auraient donc les formules approchées suivantes dans les calcschistes et marbres du Crétacé supérieur:

pour le Briançonnais $Mg_{1,2}\ Fe_{3,5}\ Al_{1,3}\ (Si_{2,7}\ Al_{1,3})\ O_{10}\ (OH)_8$

pour la Vanoise $Mg_{1,9}\ Fe_{2,5}\ Al_{1,6}\ (Si_{2,4}\ Al_{1,6})\ O_{10}\ (OH)_8$

Le métamorphisme se traduit ici par un enrichissement en aluminium dans le tétraèdre comme dans l'octaèdre et une augmentation du rapport Mg/Fe. On est tenté d'attribuer au métamorphisme le changement de composition chimique des chlorites, car la composition chimique du milieu ne semble pas intervenir. On verra en effet plus loin que les teneurs en certains éléments, le magnésium en particulier, sont constantes pour la fraction silicatée.

Ces chlorites font partie du groupe des ripidolites dans la classification de FOSTER (1962), (voir fig. 88).

b) Les micas

Cristallinité

Les techniques mises au point pour l'étude des illites dans la zone de diagenèse ont été utilisées ici. La mesure des deux paramètres préconisés par ESQUEVIN (1969) a été reportée sur la figure 77. Les cinq zones décrites plus haut correspondent à des aires bien identifiables sur cette figure. Les lignes horizontales déterminant les limites du domaine métamorphique seront définies plus loin (voir fig. 101).

Les "couches rouges" des Préalpes appartiennent franchement au domaine sédimentaire. Les klippes de Chabrières ont des illites dont la cristallinité les situe au centre de cette zone de transition, dite "anchizone", comme les "terres noires" sous-jacentes. Briançonnais et Vanoise ont des illites dont la perfection est celle des micas du métamorphisme. Ce sont des micas, malgré leur taille encore très réduite (ils sont présents dans la fraction inférieure à 2μ).

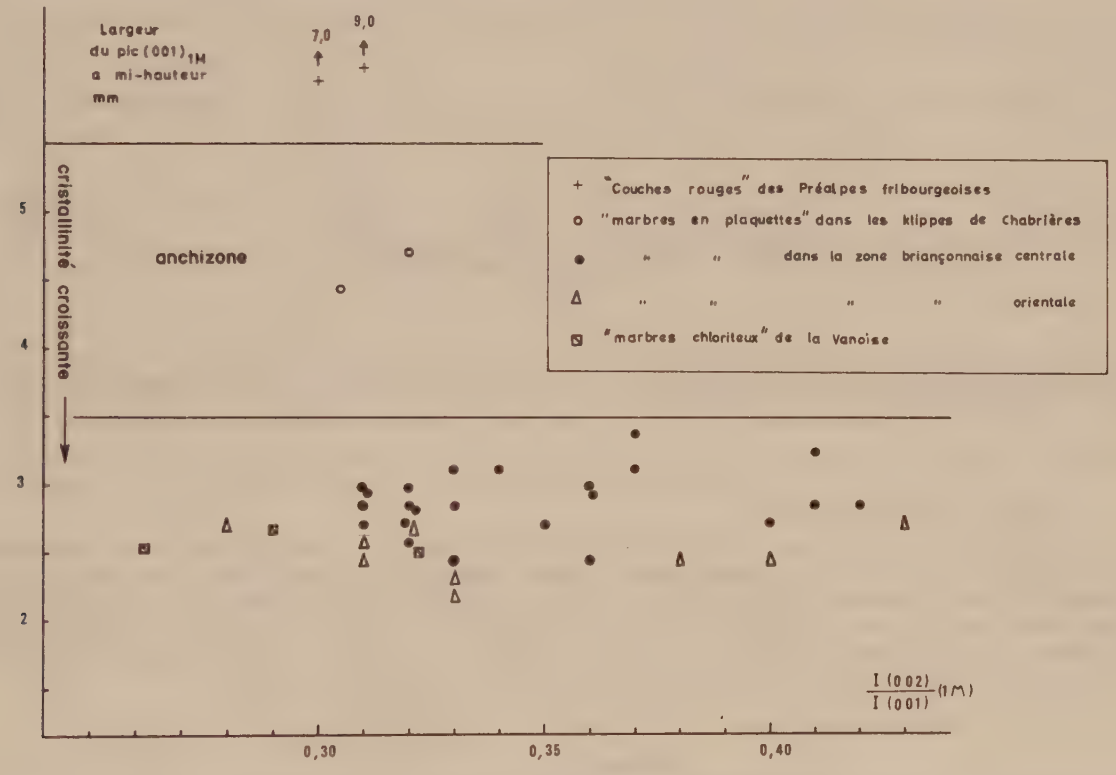


Fig. 77 - Caractérisation des micas dans les calcschistes du Crétacé supérieur selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

La figure 77 appelle encore trois remarques :

- La cristallinité croît très nettement de la zone centrale à la zone orientale du Briançonnais. C'est donc un indicateur fidèle et sensible.

- Les marbres de Vanoise, soumis à un métamorphisme beaucoup plus poussé que la zone orientale du Briançonnais n'ont pas une cristallinité plus élevée. C'est en effet qu'on a presqu' atteint à ce moment la cristallinité maximale, ainsi que le montreront d'autres mesures.

- Le rapport I(002)/I(001) ne varie guère. Il se situe autour de 0,3 et 0,4. C'est la valeur qu'on mesure pour les micas de type phengite.

Paragonite

La diffraction des rayons X a révélé la présence de paragonite en trois régions :

- dans les marbres de Vanoise (éch. 104, 106, 107),
- dans la région au nord de Briançon (éch. 8, 11, 59),
- dans la partie orientale de la zone briançonnaise (éch. 29, 30, 36, 39).

On en relève aussi des traces dans les écailles de Serre-Chevalier. La paragonite est aisément identifiable sur les diagrammes des préparations orientées par ses raies intenses à 9,6 Å (002), 4,8 (004) et 3,2 (006) (fig. 78).

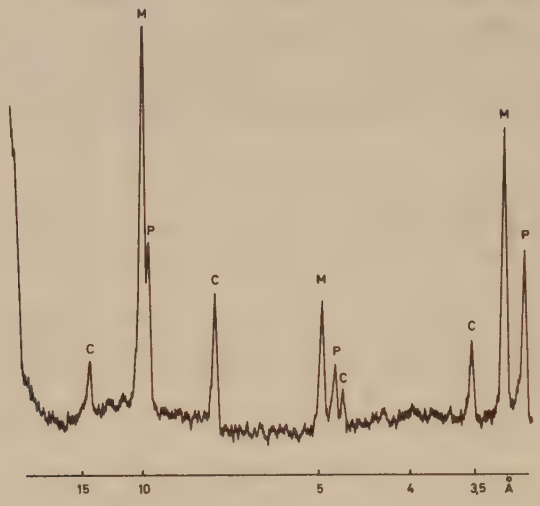


Fig. 78 - Marbres chloriteux de Vanoise. Eglise de Pralognan. Association chlorite (C)-muscovite (M)-paragonite (P)

Muscovites paragonitiques

Une certaine proportion de sodium peut entrer entre les feuillets des micas potassiques, constituant ainsi des muscovites paragonitiques. Cela s'accompagne d'une légère contraction du réseau, mesurable par le déplacement des pics de diffraction (GUIDOTTI, 1966). Des mesures précises du pic (0010) des micas de Vanoise ont été faites avec une vitesse de rotation du goniomètre de 0,5°/minute, et en utilisant de la fluorine comme standard interne. Celle-ci présente en effet une raie intense toute proche de celle qu'on veut mesurer ici [(220) à 1,931 Å].

Les résultats sont les suivants :

Tableau XXVI

Marbres chloriteux de Vanoise
Paramètres cristallographiques

Echantillon	d $(0010)_{2M}$	d $(002)_{2M}$
A 103	1,989	9,945
A 104	1,991	9,955
A 105	1,990	9,950
A 106	1,991	9,955
A 107	1,991	9,955
	±0,001	±0,005

Selon les données de GUIDOTTI (1966) les relations entre teneur en sodium et d (002) s'établissent comme suit :

Tableau XXVII

Relation entre d(002) et Na/K + Na dans les muscovites selon GUIDOTTI (1966)

$d\ (002)_{2M}$	Na/K + Na
9,929	0,30
9,954	0,20
9,965	0,14
9,985	0,06

La comparaison des deux tableaux précédents indique que les muscovites renferment une quantité de sodium constante et qui s'établit autour de 20 % de la teneur totale en alcalins. L'examen des analyses chimiques (tableau XXIX) montre que le sodium est présent dans toute la série, avec un rapport Na/K plus fort que dans un faciès à séricite et chlorite banal.

En résumé, l'étude minéralogique des micas nous montre

- une cristallinité croissante avec le métamorphisme,
- l'apparition de paragonite bien cristallisée dans les zones les plus métamorphiques,
- la nature phengitique de ces micas selon le rapport I(004)/I(002)
- la nature sodique (à 20 % environ) de ces muscovites phengitiques selon la valeur de d(002) .

2 - Analyses chimiques

Les deux tableaux qui suivent présentent la composition chimique de quelques roches totales et des fractions inférieures à 2μ décarbonatées pour la plupart des échantillons.

a) Chimie de roche totale

La constance du faciès est évidente sur le tableau XXIX. Elle a été invoquée tout à l'heure comme un des avantages de ces calcschistes pour l'étude comparative qui est entreprise ici. La teneur moyenne en $CaCO_3$ s'établit autour de 70 %.

Le seul facteur d'évolution diagénétique ou métamorphique directement lisible sur ces analyses globales est la déshydratation du sédiment (tableau XXVIII).

Tableau XXVIII

Déshydratation des "marbres en plaquettes".

Zone	teneur moyenne en H_2O^+
Préalpes	1,67 %
Embrunais	1,27
Briançonnais	0,94
Vanoise	0,62

b) Chimie de la fraction fine décarbonatée (tableau XXX)

Certaines de ces données ont été déjà utilisées pour confirmer les données de la cristallographie : nature ferreuse des chlorites, nature partiellement magnésienne et sodique des muscovites, présence de paragonite.

Le caractère le plus évident de ces compositions chimiques est leur constance, particulièrement remarquable pour le magnésium.

Certains éléments offrent quand même des teneurs statistiquement variables d'une zone à l'autre. Ce sont les alcalins (tableau XXXI).

Tableau XXIX

Calcschistes du Crétacé supérieur ("marbres en plaquettes").
Composition chimique de la roche totale

		SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	FeO	P_2O_5	Na_2O	K_2O	CO_2	H_2O^+	H_2O^-	Somme
Briançonnais Central	(1) A 1	17,23	3,42	2,86	39,80	1,71	0,50	0,10	0,35	1,36	31,02	0,99	0,18	99,76
	(2) A 2	10,52	2,65	1,30	45,52	0,81	0,60	0,10	0,25	0,93	36,37	0,91	0,08	100,21
	A 30/1	19,88	4,75	1,30	38,62	0,98	1,07	0,07	0,25	1,28	29,50	1,21	0,06	99,25
	A 30/2	14,80	2,94	1,04	43,90	0,46	0,61	0,04	0,73	0,53	33,73	0,67	0,05	99,76
	A 30/3	17,60	2,96	1,30	40,90	0,64	0,71	0,06	0,60	0,93	32,20	0,90	0,04	99,11
Embrunais	A 53	18,60	3,93	1,30	39,40	0,90	0,84	0,05	0,45	1,22	30,30	1,41	0,05	98,69
	(1) A 54	12,84	3,34	3,49	41,48	1,28	0,26	0,05	0,30	1,22	33,66	1,12	0,07	99,33
Préalpes	(1) A 100	19,25	4,58	2,17	37,32	1,47	0,61	0,05	0,50	1,22	29,90	1,67	0,18	99,26
Vanoise	A 107	10,75	4,21	0,99	44,63	1,28	0,46	0,07	0,40	1,14	34,34	0,62	0,04	99,11

(1) faciès rouge

(2) présence de matière organique

Tableau XXXI

Variation statistique de quelques éléments dans les calcschistes du Crétacé supérieur de la zone briançonnaise

Zones	Na_2O	K_2O	$Na_2O + K_2O$	MgO
Préalpes	1,01	3,61	4,62	2,9
Briançonnais	0,86	4,50	5,36	3,4
Vanoise	1,15	5,23	6,38	3,0

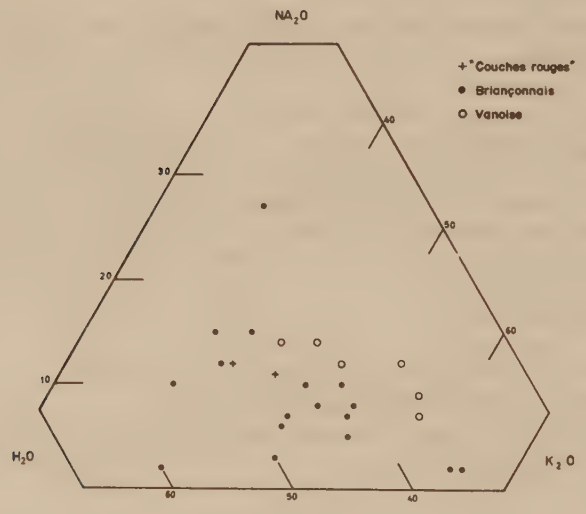


Fig. 79 - Calcschistes du Crétacé supérieur. Variation des teneurs en alcalins dans les phyllosilicates.

L'enrichissement en alcalins est manifeste, particulièrement pour le potassium. La figure 79 rend visible la dispersion des valeurs. Les échantillons des "couches rouges" des Préalpes n'occupent pas de position singulière. Ceux du Briançonnais montrent un certain éparpillement. Quant aux marbres de Vanoise, ils forment un groupe situé plus à droite sur le diagramme, c'est-à-dire plus riche en alcalins, l'enrichissement en potassium étant le plus important.

Ces données appellent les remarques suivantes.

- L'incorporation des alcalins aux structures silicatées exprime l'un des processus majeurs de la diagenèse profonde, puis du métamorphisme.

Ces cations se trouvaient jusque là associés aux solutions interstitielles, dont la part se réduit peu à peu au cours de ces processus.

- C'est dans le réseau des micas qu'entrent ces alcalins. Ils se logent dans les espaces interfoliaires, soit des réseaux déjà existants, soit des minéraux qui grandissent ou prennent naissance. Quand ces ions alcalins nourrissent les espaces interfoliaires déjà existants, cela exprime une augmentation de la charge des feuillets. On verra qu'un tel phénomène est observable dans certains cas, et qu'il correspond à une tétracoordination progressive de l'aluminium. Celle-ci a d'ailleurs été démontrée quelques pages plus haut pour les chlorites.

Tableau XXX

Calcschistes du Crétacé supérieur de la zone briançonnaise. Composition chimique de la fraction inférieure à 2μ, décarbonatée.

	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Somme	H_2O
A2	64,0	17,7	3,9	< 0,2	4,6	0,018	0,66	0,76	5,27	4,39	101,25	0,43
A4	67,0	17,4	2,6	< 0,2	4,6	0,018	0,60	0,83	2,81	4,41	100,25	0,70
A7	61,8	18,5	3,1	< 0,2	6,4	0,025	0,72	2,46	3,05	3,48	99,51	0,25
A9	61,7	20,0	3,3	< 0,2	5,8	0,033	0,76	0,70	4,63	4,74	101,75	0,85
A11	56,2	22,3	3,8	<0,2	6,9	0,039	0,87	1,26	3,80	5,02	100,28	0,38
A15	65,6	19,3	2,8	< 0,2	5,3	0,020	0,84	1,13	4,05	3,71	102,67	0,23
A19	63,9	20,1	2,6	< 0,2	4,4	0,018	0,65	0,25	6,86	3,86	102,69	0,33
A23	73,0	13,7	2,6	0,4	3,5	0,020	0,50	0,60	4,11	3,30	101,75	0,63
A26	60,6	19,0	3,9	< 0,2	5,7	0,020	0,74	1,00	4,49	4,29	99,84	0,38
A28	58,4	21,4	3,1	< 0,2	5,2	0,020	0,74	1,53	3,82	4,55	98,66	0,53
A29	62,9	15,1	3,6	< 0,2	5,5	0,018	0,60	0,22	3,75	3,98	95,57	0,80
A30	55,1	21,1	4,0	< 0,2	7,0	0,028	0,78	0,51	5,72	4,75	98,94	0,45
A32	61,0	18,6	5,1	< 0,2	2,5	0,014	0,53	0,25	7,15	4,20	99,31	0,53
(1) A32	55,7	17,2	4,2	< 0,2	10,2	0,098	0,54	0,24	4,35	6,75	99,17	0,80
A36	56,5	21,2	3,9	< 0,2	6,9	0,024	0,66	0,65	4,75	5,02	99,63	0,45
A53	65,9	14,9	2,5	< 0,2	5,3	0,018	0,47	0,87	4,18	3,56	97,72	0,93
(1) A59	56,6	20,4	3,3	< 0,2	7,4	0,033	0,69	1,41	3,35	4,52	97,75	0,43
(1) A61	58,3	20,5	3,6	0,2	7,7	0,023	0,71	0,81	4,92	4,44	101,30	0,90
(1) A100	65,7	16,0	2,5	0,3	5,9	0,025	0,55	0,96	3,83	4,16	99,90	1,98
A101	64,4	14,8	3,3	0,2	5,1	0,019	0,52	1,05	3,39	4,33	97,13	2,09
A102	62,1	21,8	3,5	0,5	4,3	0,048	0,92	1,43	4,53	4,10	103,18	0,05
A103	62,9	21,5	3,4	0,2	4,0	0,045	0,69	1,27	5,12	4,18	103,20	0,13
A104	60,8	21,8	2,9	< 0,2	4,9	0,021	0,70	0,77	6,21	3,94	102,03	0,08
A105	66,0	18,5	3,1	< 0,2	4,5	0,025	0,63	1,18	5,11	3,44	102,50	0,00
A106	65,2	19,3	2,7	< 0,2	5,2	0,027	0,79	1,16	3,60	3,79	101,83	0,07
A107	55,0	26,3	2,6	0,3	5,1	0,033	0,85	1,08	6,83	4,34	102,39	0,05

(1) faciès rouge

III - RESUME DE L'ETUDE DES CALCSCHISTES DU CRETACE SUPERIEUR DE LA ZONE BRIANÇONNAISE

1 - Les calcschistes du Crétacé supérieur de la zone briançonnaise ont été échantillonnés dans cinq régions où le métamorphisme alpin s'est exercé de façon très inégale :

- les Préalpes fribourgeoises ("couches rouges"),
- les klippes de Chabrières dans les nappes de l'Embrunais,

- la partie centrale du Briançonnais s.s.,
- la partie orientale du Briançonnais, en Queyras, au contact des schistes lustrés,
- la Vanoise ("marbres chloriteux").

2 - La déshydratation des roches est régulière au cours du métamorphisme.

3 - La chlorite est présente partout. Elle s'enrichit en aluminium et en magnésium au cours du métamorphisme. La formule moyenne est

$$Mg_{1,2}\ Fe_{3,5}\ Al_{1,3}\ (Si_{2,7}\ Al_{1,3})\ O_{10}\ (OH)_8 \text{ en Briançonnais}$$
$$Mg_{1,9}\ Fe_{2,5}\ Al_{1,6}\ (Si_{2,4}\ Al_{1,6})\ O_{10}\ (OH)_8 \text{ en Vanoise}$$

4 - La paragonite se développe dans les zones les plus métamorphisées (Vanoise, nord et est du Briançonnais s.s.)

5 - La muscovite voit sa cristallinité progresser pour atteindre une valeur maximale à l'est du Briançonnais s.s. et en Vanoise. Les diffractogrammes indiquent une muscovite phengitique, c'est-à-dire relativement pauvre en aluminium et riche en magnésium et en fer, et en outre partiellement sodique. L'augmentation de la teneur en alcalins vers les zones métamorphiques traduit une augmentation de la charge des feuillets.

CHAPITRE XII

MICAS ET CHLORITES DANS LES QUARTZITES ET LES « SCHISTES LUSTRÉS » DE LA ZONE PIÉMONTAISE (ALPES OCCIDENTALES)

Poursuivant l'inventaire des minéraux phylliteux liés aux transformations diagénétiques, puis métamorphiques, il était intéressant d'étudier un horizon lithostratigraphique à travers des zones de métamorphisme variable. Un tel projet a été déjà réalisé avec les "terres noires" dans la zone externe (chapitre 10), et avec les "marbres en plaquettes" dans la zone briançonnaise (chapitre 11).

Pour la zone piémontaise, A. MICHARD m'a proposé deux faciès : les quartzites micacés du Permo-trias et les schistes lustrés. Ces deux faciès présentent un double intérêt par leur richesse en micas et par leur grande extension géographique d'est en ouest, à travers les unités tectoniques et les zones de métamorphisme.

L'échantillonnage a été fait dans les Alpes cottiennes, et plus précisément dans cette partie des montagnes piémontaises s'étendant du nord au sud entre les massifs de Dora-Maira et d'Argentera, et depuis les hauts sommets du Queyras à l'ouest jusqu'au bassin plio-quaternaire du Pô à l'est (fig. 76). La géologie générale de ces régions vient de faire l'objet de deux thèses (MICHARD,1967; VIALON,1966) qui présentent une somme complète des connaissances sur la stratigraphie, la tectonique, l'évolution métamorphique et orogénique de cette partie des Alpes. J'y renvoie le lecteur qui voudrait mieux connaître le cadre géologique du présent travail.

Les échantillons ont été soumis aux techniques décrites page 48 pour en extraire micas et chlorites. Ces minéraux, isolés et purifiés, ont été étudiés optiquement, cristallographiquement et chimiquement.

I - LES MICAS DES QUARTZITES DU PERMO-TRIAS

Ces quartzites sont décrits par MICHARD (1967, p. 101) et VIALON (1966, p. 58). Les échantillons étudiés ici, situés sur la figure 76, sont les suivants :

Ech. 631. Val Molasco. Quartzite en plaquettes à interlits micacés verdâtres, plissoté, fracturé, à quartz exsudé.

Ech. 623. San Pietro di Stroppo. Quartzite blanc verdâtre feuilleté.

Ech. 627. Route de Sampeyre au col de Sampeyre. Quartzite blanc lité à grands micas vert pâle.

Ech. 628. Madonna del Vernet. Micaschiste quartzitique gris argent.

La situation structurale de ces échantillons permet de les classer d'ouest en est dans des zones de métamorphisme croissant :

Ouest - 631 - 623 - 627 - 628 - Est.

1 - Angle des axes optiques

Ces micas sont biaxes négatifs, comme tous les micas. La détermination de l'angle des axes a été faite à la platine universelle sur minéraux isolés. Elle n'a pas été possible pour les micas 631 qui sont constitués d'agrégats de petits cristaux cataclasés et cicatrisés. Pour les autres, un grand nombre de mesures (plusieurs dizaines pour chaque minéral) permet d'indiquer les valeurs suivantes :

Tableau XXXII

Quartzites. Données optiques sur les micas.

mica	2V moyen	valeurs extrêmes	battement
623	38	29 - 42	13
627	40	31 - 44	13
628	34	18 - 40	22

2 - Données cristallographiques et chimiques

Tableau XXXIII

Quartzites. Données cristallographiques sur les micas (indices 2M).

micas	d(002)	d(11$\bar{4}$)	d(114)	d(060)	$\frac{I\ (004)}{I\ (002)}$	largeur (002)
631	9,950	3,50	3,21	1,508	0,25	1,8
623	9,920	3,49	-	1,504	0,40	1,5
627	9,915	3,49	3,19	1,508	0,44	1,4
628	9,930	3,49	3,20	1,506	0,62	1,9

Tableau XXXIV

Quartzites. Analyses chimiques des micas.

	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Total
631	53,8	24,9	2,2	< 0,2	4,8	< 0,010	0,17	< 0,1	10,37	4,06	100,37
623	58,3	27,4	2,6	< 0,2	2,0	< 0,010	0,30	< 0,1	10,65	4,19	100,98
627	51,5	28,3	2,4	< 0,2	6,0	0,013	0,20	< 0,1	11,35	4,44	104,20
628	50,0	29,3	2,2	< 0,2	5,3	< 0,010	0,44	0,35	10,00	4,31	101,89

Tableau XXXV

Quartzites. Formules structurales des micas.

Position	cation	631	623	627	628
Couche tétraédrique	Si	3,54	3,50	3,31	3,27
	Al	0,46	0,50	0,69	0,73
	charge	-0,46	-0,50	-0,69	-0,73
Couche octaédrique	Al	1,47	1,59	1,46	1,52
	Fe^{3+}	0,23	0,10	0,29	0,26
	Mg	0,22	0,25	0,23	0,22
	Ti	0,01	0,01	0,01	0,02
	Total	1,93	1,95	1,99	2,02
	charge	-0,42	-0,39	-0,25	-0,14
Interfoliaire	K	0,88	0,89	0,94	0,83
	Na	0	0	0	0,04
	charge	+0,88	+0,89	+0,94	+0,87

3 - Interprétation des données

Certaines de ces données apparaissent comme constantes ou variant peu, ou encore variant de façon aléatoire, sans relation avec l'intensité du métamorphisme. D'autres, en revanche, présentent un gradient très net de l'extérieur vers l'intérieur de la zone piémontaise.

a) Variations nulles, faibles ou sans relation avec l'intensité du métamorphisme

Micas biaxes négatifs. 2V moyen : 37°. Cette valeur tombe à l'intérieur de l'histogramme des phengites, dont l'angle 2V présente un maximum de fréquence entre 29 et 39° (BEUGNIES, GODFRIAUX et ROBASZINSKY, 1968). Les muscovites alumineuses 2M ont un angle des axes compris entre 30 et 47° (DEER, HOWIE et ZUSSMAN, 1962).

Micas tous dioctaédriques (d(060) = 1,506) et de type 2M (raies $11\bar{4}$ et 114)

Epaisseur moyenne du feuillet élémentaire : 9,93 Å. Cette valeur moyenne, assez basse, n'est pas ici en relation avec la présence de Na^+ en position interfoliaire, comme dans le chapitre précédent.

Cristallinité constante, ayant déjà atteint la valeur maximale qu'on mesure dans les zones de métamorphisme (fig. 80).

Teneur constante en alcalins, indiquant une charge du feuillet elle-même constante. Cette charge varie entre les limites de 0,87 à 0,94 par demi-maille.

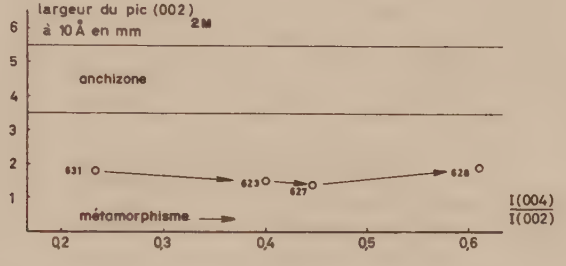


Fig. 80 - Micas des quartzites permiens de la zone piémontaise. (Indices 2M). Caractérisation par la méthode d'ESQUEVIN (1969).

b) Variations en relation avec l'intensité du métamorphisme

Augmentation de la teneur en aluminium. Al_2O_3 passe de 24,9 à 29,3 %.

Tétracoordination de l'aluminium. L'enrichissement en aluminium s'effectue uniquement au niveau de la couche tétraédrique par substitution de Al à Si (tableau XXXV).

La charge de la couche tétraédrique augmente, par conséquent, passant de 0,46 à 0,73 (fig. 81).

La couche octaédrique se garnit progressivement. Le nombre de cations par demi-maille passe par les valeurs 1,93 - 1,95 - 1,99 - 2,02 (fig. 81).

La charge de la couche octaédrique diminue, par conséquent, passant de 0,42 à 0,14. Cette charge reste négative. Les micas sont donc hypo-octaédriques (PÉDRO, 1965) (fig. 81).

Ces variations au niveau de la couche octaédrique se font sentir dans l'intensité relative des raies de diffraction (002) et (004), dont le rapport passe de 0,25 à 0,62 (fig. 80).

4 - Conclusion

La cristallochimie des micas dioctaédriques révèle une grande sensibilité de ces minéraux aux actions métamorphiques. Les quartzites permo-triasiques des Alpes cottiennes renferment un "mica blanc" potassique. L'action croissante du métamorphisme ne modifie pas la teneur en potassium (0,9) mais réalise :

- un enrichisssement en aluminium dans la couche tétraédrique,
- une diminution de la charge de la couche octaédrique.

C'est donc une évolution qui conduit des phengites vers les muscovites (fig. 82).

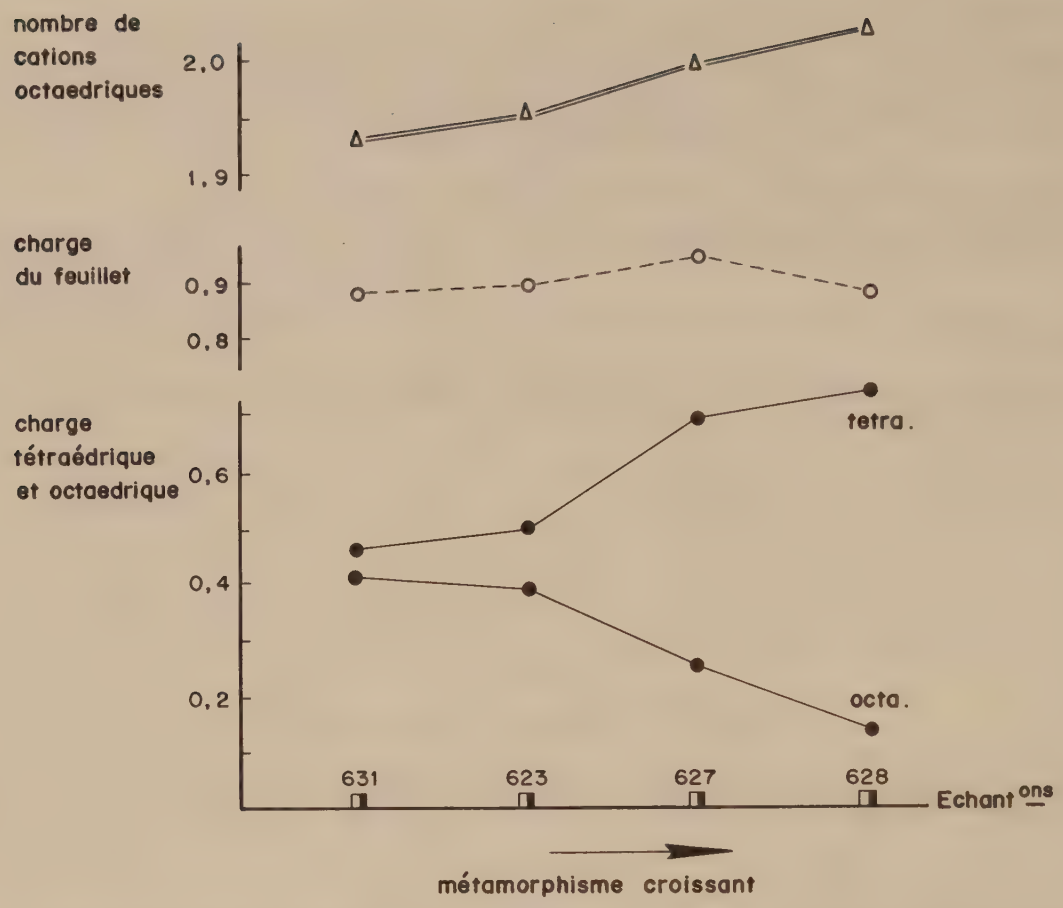


Fig. 81 - Micas des quartzites permiens de la zone piémontaise. Quelques paramètres cristallochimiques de la demi-maille.

II - LES MICAS DES "SCHISTES LUSTRES"

1 - Pétrographie

Les échantillons sont des calcschistes dont la teneur en calcite varie dans de très larges proportions. Ils ont un aspect terne, argileux, dans la partie la plus occidentale (la zone d'Acceglio), et prennent progressivement l'aspect de micaschistes en allant vers l'est (fig. 76). La croissance des micas est particulièrement évidente. On trouvera dans le mémoire de MICHARD (1967) les données stratigraphiques et structurales nécessaires pour interpréter la situation de ces échantillons, ainsi que leur histoire métamorphique.

L'étude des paragenèses (MICHARD, 1967, tableau 8) permet d'établir quatre groupes de métamorphisme croissant :

groupe I : éch. 630. Val Molasco. Calcschiste fin gris foncé à lits quartzocalcitiques et phylliteux alternant.

groupe II : éch. 629. Val Molasco. Calcschiste satiné à clinozoïsite.
éch. 626. Col de Sampeyre. Calcschiste micacé à tourmaline.
éch. 624 et 625. Entre Cucchiale et Morinesio. Calcschiste micacé à tourmaline et épidote.
éch. 632. Torrent de Marmora. Calcschiste micacé à épidote.

groupe III : éch. 621. Celle-di-Macra. Micaschiste calcitique argenté à épidote et sphène.

groupe IV : éch. 622. Vallon de Celle. Micaschiste dépourvu de calcite, riche en glaucophane, grenat, épidote, sphène et zircon.

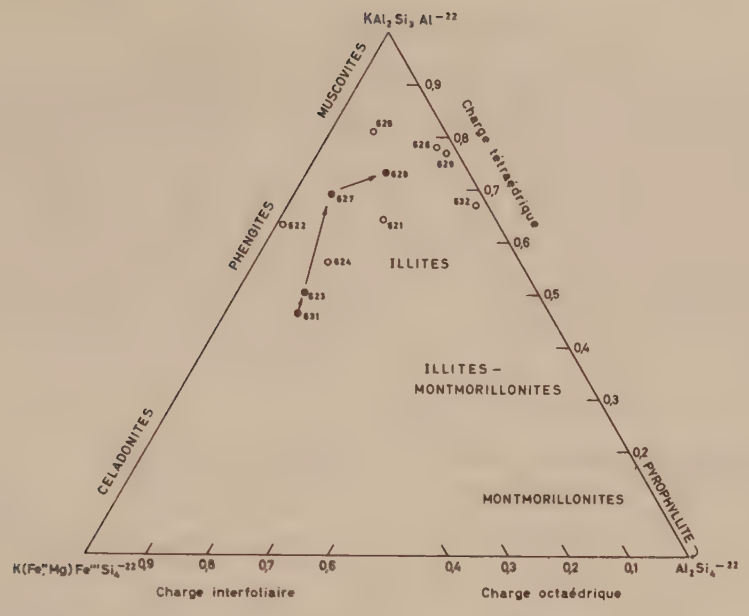


Fig. 82 - Composition chimique de quelques micas dans la zone piémontaise.

En ronds pleins : quartzites permiens. Les flèches indiquent un métamorphisme croissant.

En ronds creux : schistes lustrés.

2 - Résultats des analyses de laboratoire

Tableau XXXVI

Micas des schistes lustrés. Angle des axes optiques (2V) en degrés.

Groupe	Echantillon	2V	valeurs extrêmes	battement
I	629	40	36 - 41	5
II	626	41	36 - 51	15
	625	38	37 - 39	2
	624	35	22 - 39	17
	632	35	33 - 39	6
IV	622	42	29 - 51	22

Tableau XXXVII

Micas des schistes lustrés. Données cristallographiques

Groupe	Echantillon	d(002)	$d(11\bar{4})$	d(114)	d(060)	$\frac{I(004)}{I(002)}$	largeur (002)
I	630	9,955	-	3,20	1,507	0,53	-
II	629 bis	9,930	-	3,19	1,502	0,48	2,7
	629	9,940	3,48	3,19	1,500	0,49	2,7
	626	9,945	3,50	3,20	1,505	0,52	3,0
	625	9,920	3,46	3,18	1,499	0,55	2,3
	624	9,925	3,47	3,19	1,503	0,45	2,1
	632	9,935	3,49	3,20	1,505	0,55	2,3
III	621	9,905	3,52	3,19	1,504	0,37	2,3
IV	622	9,900	3,47	3,19	1,505	0,33	1,6

Tableau XXXVIII

Micas des schistes lustrés. Analyses chimiques.

Echant.	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Total
629	48,8	30,2	3,2	0,4	3,6	< 0,010	0,34	0,81	7,45	6,19	100,90
626	48,3	29,3	3,3	< 0,2	4,5	0,011	0,51	1,28	7,25	6,25	100,62
625	49,7	32,6	1,5	< 0,2	2,2	< 0,010	1,64	2,82	6,85	5,32	102,59
624	51,9	26,4	4,5	0,2	1,7	< 0,010	0,12	0,56	9,13	5,89	100,40
632	48,0	21,2	9,5	< 0,2	3,5	0,047	1,16	0,48	7,09	9,74	100,72
621	52,2	29,0	2,6	0,3	3,6	< 0,010	0,59	0,94	8,17	5,31	102,59
622	52,9	29,2	2,6	0,4	2,6	< 0,010	0,41	1,85	9,05	4,44	103,47

Tableau XXXIX

Micas des schistes lustrés. Formules structurales.

Position	cation	629	626	625	624	632	621	622
Couche tétraédrique	Si	3,23	3,22	3,19	3,44	3,33	3,36	3,37
	Al	0,77	0,78	0,81	0,56	0,67	0,64	0,63
	Charge	-0,77	-0,78	-0,81	-0,56	-0,67	-0,64	-0,63
Couche octaédrique	Al	1,58	1,51	1,65	1,50	1,06	1,56	1,56
	Fe^{+3}	0,18	0,22	0,11	0,08	0,18	0,17	0,12
	Mg	0,31	0,33	0,14	0,45	0,99	0,25	0,25
	Ti	0,02	0,03	0,08	0,01	0,07	0,03	0,02
	Total	2,09	2,19	1,98	2,04	2,30	2,01	1,95
	Charge	-0,02	-0,03	-0,12	-0,32	-0,02	-0,19	-0,38
couche interfoliaire	Ca	0,03	0,01	0,01	0,02	0,00	0,02	0,03
	Na	0,10	0,17	0,35	0,07	0,06	0,12	0,22
	K	0,63	0,62	0,56	0,77	0,63	0,67	0,73
	Charge	+0,79	+0,81	+0,93	+0,88	+0,69	+0,83	+1,01

3 - Interpétations

L'examen des chiffres qui précèdent fait ressortir une certaine homogénéité dans la nature des micas blancs des schistes lustrés. Une analyse fine révèle toutefois des variations significatives (fig. 85).

a) Paragonite et teneur en sodium (fig. 83 et 85)

La paragonite forme la moitié de la fraction micacée dans le faciès le moins métamorphique (éch. 630). La finesse des minéraux n'a pas permis d'isoler la paragonite pour en faire l'analyse, mais le diffractogramme est tel qu'on peut estimer à 0,9 le rapport Na/Na + K dans la fraction micacée.

Dans les autres micas, aucune phase paragonitique, même minime, n'a été décelée par les rayons X. En revanche, les paramètres cristallographiques et l'analyse chimique montrent qu'il s'agit de muscovites paragonitiques. La corrélation entre d(002) et la teneur en sodium est bonne (fig. 85). L'un des micas (625) constitue un point singulier par teneur en sodium élevée (Na/Na + K = 0,6).

b) Cristallinité et teneur en alcalins (fig. 84 et 85)

La largeur du pic $(002)_{2M}$ à mi-hauteur, fonction inverse de la cristallinité du mica, diminue sensiblement et atteint une valeur très faible dans le niveau le plus métamorphique. Ce gain de cristallinité s'accompagne généralement, dans les terrains de l'anchizone, d'une variation positive du rapport d'intensité des raies $(004)_{2M}$ et $(002)_{2M}$. Cela signifie que ce sont les micas les plus alumineux qui acquièrent la cristallinité la plus élevée. Ce n'est pas le cas ici. La variation cristallochimique, qui semble le plus directement impliquée dans l'amélioration de la cristallinité, est la

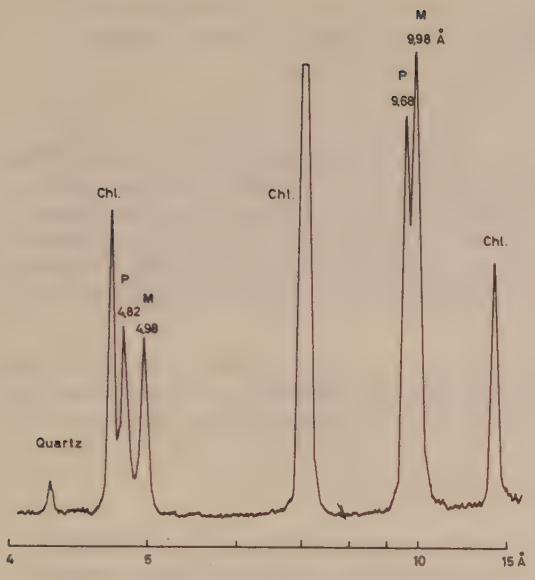


Fig. 83 - Schistes lustrés. Echantillon 630. Association chlorite-muscovite-paragonite.

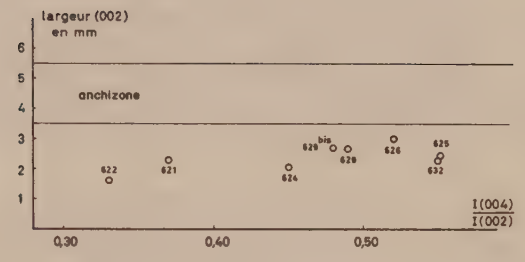


Fig. 84 - Micas des schistes lustrés. (Indices 2M). Caractérisation selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

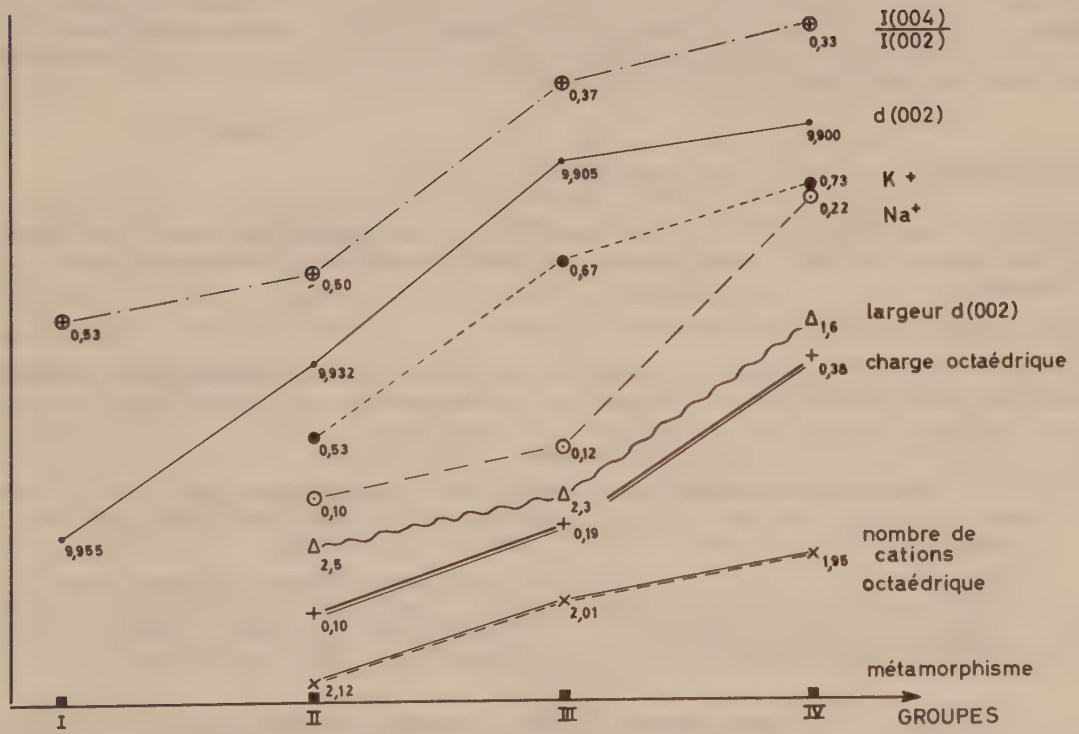


Fig. 85 - Micas des schistes lustrés. Variation de quelques paramètres en fonction de l'intensité du métamorphisme.

garniture alcaline de l'espace interfoliaire. La somme $Na^+ + K^+$ passe par les valeurs 0,63- 0,79- 0,95. Cela ne va pas sans une modification de l'équilibre des charges dans le réseau cristallin.

c) L'équilibre des charges (fig. 82 et 85)

La charge totale du feuillet passe donc de 0,63 à 0,95. Cet accroissement est normal. C'est l'aboutissement d'une longue progression qui, des montmorillonites, dont la charge est voisine de 0,3, conduit aux illites, puis aux séricites, à travers la diagenèse et le métamorphisme, pour aboutir au mica idéal dont la charge foliaire est de 1 (fig. 82). Habituellement, cet accroissement de charge négative est le fait de la couche tétraédrique, où l'aluminium vient peu à peu se substituer au silicium, jusqu'à la proportion de 1 à 3. C'est ce qu'on a observé dans le chapitre précédent pour les quartzites du Permo-trias.

Or ici la charge tétraédrique tend à diminuer légèrement (0,72 - 0,64 - 0,63). C'est au niveau de l'octaèdre, exclusivement, que s'effectue l'accroissement de charge négative par diminution du nombre de cations hexacoordonnés : 2,12 - 2,01 - 1,95. L'aluminium est pratiquement constant. Ce sont le fer et le magnésium qui régressent légèrement.

d) Question de nomenclature

Il est courant de nommer phengites les micas blancs liés au métamorphisme alpin dans la zone piémontaise. La figure 82, où sont représentés les micas qui viennent d'être étudiés, montre qu'une grande variation existe dans la composition chimique de ces minéraux.

Les quartzites du Permo-trias ont livré des micas qui évoluent depuis d'authentiques phengites jusqu'à des muscovites phengitiques.

Les schistes lustrés contiennent des micas très divers, en raison sans doute du milieu géochimique beaucoup plus complexe qu'ils représentent. L'évolution qui se dessine consiste en une augmentation de la teneur en alcalins, liée à un accroissement de la charge octaédrique. A l'inverse de ce qu'on observait dans les quartzites permiens, c'est dans le niveau de métamorphisme le plus élevé que se trouve une phengite typique.

III - LES CHLORITES DES "SCHISTES LUSTRES"

La chlorite cristallise en cristaux fins, enchevêtrés, remplissant les interstices laissés libres entre les lamelles de mica. Elle tapisse les plans de glissement. Elle forme aussi de petits amas fuselés.

Quatre échantillons seulement ont fourni une chlorite assez pure pour être livrée à l'analyse.

Les tableaux qui suivent donnent les résultats des mesures cristallographiques, thermiques et chimiques. Certains d'entre eux ont été exprimés graphiquement (fig. 86 et 87).

Tableau XL

Chlorites des schistes lustrés. Données cristallographiques.

Echantillon	629_{bis}	629	626	625	632	621	622
d(001)	14,08	14,06	14,00	14,06	14,02	13,89	13,97
d(060)	1,538	1,539	1,541	1,544	1,539	1,544	1,550

Tableau XLI

Chlorites des schistes lustrés. Analyses thermiques différentielles.
Le pic endothermique 2 est particulièrement fort.

Echantillon	Endo. 1	Endo. 2	Endo. 3	Exothermique
626	135	650	755	850°C
625	180	640	750	850
621	240	635	780	850

Tableau XLII

Chlorites des schistes lustrés. Analyses chimiques.

Echant.	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Total
626	26,9	21,6	15,5	1,1	24,8	0,182	0,14	0,12	0,62	10,18	101,24
625	28,7	22,9	14,4	< 0,2	26,4	0,009	0,19	< 0,10	0,25	8,83	101,82
621	27,6	22,6	13,7	0,2	26,0	0,230	0,39	0,17	0,62	8,60	100,04
622	27,3	22,3	9,7	0,4	33,1	0,460	0,21	0,56	0,45	6,28	100,74

Tableau XLIII

Chlorites des schistes lustrés. Formules structurales.
Le fer, dosé par spectrométrie, a été entièrement compté comme bivalent.

Position	Cation	626	625	621	622
Tétraédrique	Si	2,77	2,87	2,83	2,82
	Al	1,23	1,13	1,17	1,18
	Charge	-1,23	-1,13	-1,17	-1,18
Octaédrique	Al	1,39	1,57	1,55	1,53
	Mg	2,40	2,16	2,10	1,50
	Fe^{+2}	1,92	1,97	2,00	2,57
	Mn	0,02	0,01	0,02	0,04
	Ti	0,01	0,01	0,03	0,02
	Nombre	5,74	5,72	5,70	5,66
	Charge	+0,89	+1,04	+1,02	+0,93
Echangeable	Ca	0,12	0,02	0,02	0,04
	Na	0,02	0,02	0,03	0,11
	K	0,08	0,03	0,08	0,06
	Charge	+0,34	+0,09	+0,15	+0,25
$\frac{Fe^{+2}}{Fe^{+2} + Mg}$		0,44	0,48	0,49	0,63

Quelques remarques s'imposent à la lecture de ces résultats.

1 - La composition chimique

Elle est assez uniforme, surtout pour les échantillons 626, 625 et 621. La chlorite 622 se signale par une teneur en alcalins atteignant 1 % et surtout par un rapport Fe/Mg beaucoup plus élevé. Cette différence est en accord avec les données optiques : la chlorite 622 présente un léger pléochroïsme vert et une teinte de biréfringence bleu-lavande, alors que les autres sont incolores et polarisent dans les teintes gris à gris-brun.

2 - L'analyse thermique différentielle

Elle a été faite sur des lots de granulométrie identique pour que les courbes soient comparables. On sait combien la courbe ADT des chlorites est sensible au degré de broyage des minéraux.

Le premier pic endothermique correspond au départ de l'eau adsorbée. La température passe de 135 à 240°C traduisant probablement un changement dans le caractère des surfaces des cristallites. Le second pic, le plus intense, est lié à la destruction de la couche brucitique : celle-ci semble moins stable dans le niveau le plus métamorphique. Le troisième, faible, est attribué à la destruction du feuillet micacé : celui-ci, en revanche, voit sa stabilité augmenter.

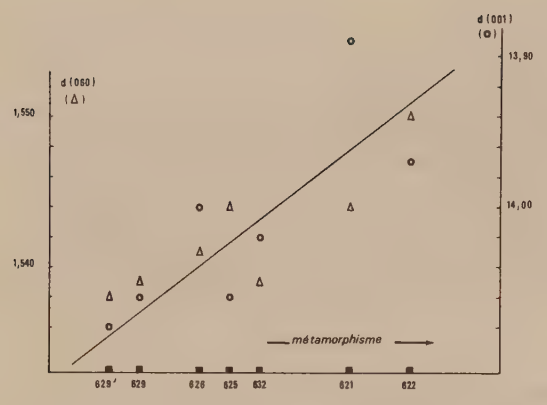


Fig. 86 - Chlorites des schistes lustrés. Variation de deux paramètres cristallographiques en fonction de l'intensité du métamorphisme.

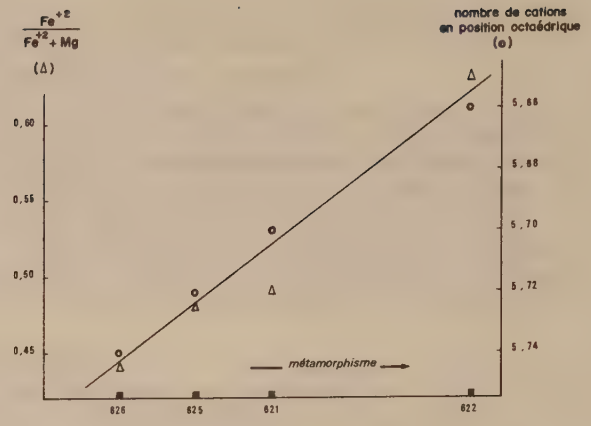


Fig. 87 - Chlorites des schistes lustrés. Variation des sites octaédriques au cours du métamorphisme.

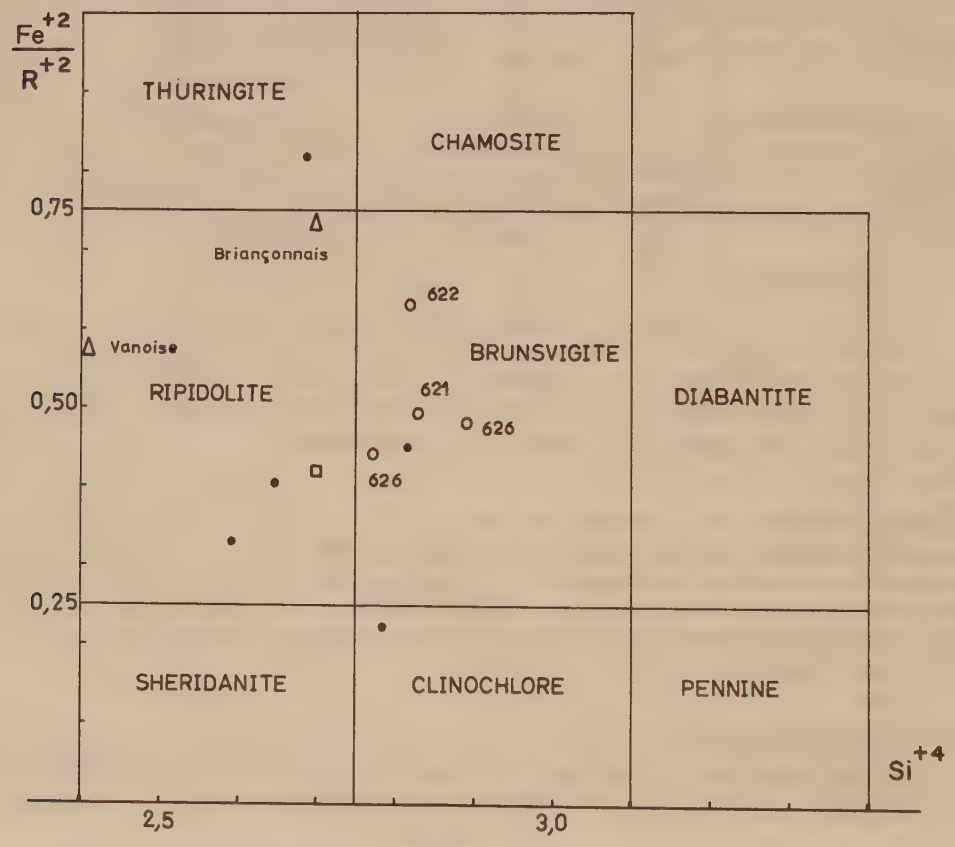


Fig. 88 - Chlorites des schistes lustrés dans la classification de FOSTER (1962).

Ronds creux : schistes lustrés
Triangles : calcschistes et marbres de la zone briançonnaise
Points : micaschistes des Pyrénées Orientales (GUITARD, 1970)
Carré : moyenne de 46 analyses se rapportant à des schistes, filons quartzitiques et granites (KEPEZHINSKAS et SOBOLEV, 1965).

3 - Les paramètres cristallographiques (fig. 86)

d(001) diminue très légèrement avec le métamorphisme. La relation entre ce paramètre et la quantité d'aluminium tétracoordonné (BRINDLEY, 1961) n'est pas observable ici.

d(060) augmente, traduisant bien un enrichissement en fer (BRINDLEY, 1961), ainsi qu'en témoignent les formules structurales.

4 - Les formules structurales

L'analyse chimique par spectrométrie dose la totalité du fer à l'état ferrique. C'est bien à l'état de Fe^{2+} qu'il se présente dans les micas dioctaédriques. Mais dans les chlorites le rapport $Fe^{2+}/Fe^{2+} + Fe^{3+}$ est de 0,924 (moyenne de 39 analyses in DEER, HOWIE et ZUSSMAN, 1962). Pour pouvoir calculer les formules structurales des quatre chlorites analysées ici, j'ai supposé que tout le fer était à l'état bivalent.

Les seules variations qui puissent être mises en relation avec l'intensité du métamorphisme sont :

- le remplacement progressif du magnésium par le fer,
- l'augmentation du nombre de cations en position octaédrique (fig. 87).

5 - Classification des chlorites

L'indétermination sur le rapport Fe^{2+}/Fe^{3+} ne permet pas de fixer avec précision la place des chlorites étudiées ici dans les classifications modernes (HEY, 1954; FOSTER, 1962). La teneur en Fe^{2+} a été surestimée.

Il est cependant possible, en première approximation, de les situer dans le groupe des brunsvigites (fig. 88).

CHAPITRE XIII

LE PALÉOZOIQUE DU VERSANT SUD DE LA MONTAGNE NOIRE (SUD DU MASSIF CENTRAL FRANCAIS)

Le versant sud de la Montagne Noire présente un Paléozoïque à peu près complet, bien daté, affleurant dans les monts du Minervois, du Saint-Ponais, de Pardailhan et de Faugères. Ces terrains, considérés comme non métamorphiques dans les montagnes que je viens de citer, sont affectés par une tectonique hercynienne très complexe.

Je me suis proposé d'effectuer un échantillonnage statistique des principaux faciès schisteux pour en étudier les minéraux argileux. L'échantillonnage a été fait en suivant les indications cartographiques de GEZE (1949).

Une centaine d'échantillons ont été analysés. Ils se rapportent à quatre ensembles principaux :

- les schistes X et ξ que j'appellerai "micaschistes",
- divers niveaux schisteux du Cambrien,
- les schistes de l'Ordovicien,
- les schistes du Viséen dans les monts de Faugères.

I - LE FACIES A ILLITE ET CHLORITE

Exception faite de 6 échantillons dont il sera question plus loin, les minéraux argileux sont toujours l'illite et la chlorite. C'est l'association qu'on rencontre inévitablement, quel que soit le faciès lithologique, dans les séries touchées par une diagenèse d'enfouissement importante ou un léger métamorphisme général.

La chlorite est stable au chauffage, l'illite présente une cristallinité élevée. La figure 89 permet de faire les observations suivantes.

1 - Le Viséen et le Silurien présentent des cristallinités élevées pour des rapports I(002)/I(001) supérieurs à 0,28. Cette disposition est classique : elle traduit une recristallisation un peu plus poussée que celle qui permet de définir l'anchizone.

2 - Les différents niveaux schisteux du Cambrien ont tous des illites dont la cristallinité est voisine de celle des séricites de l'épizone. Le rapport I(002)/I(001) indique en outre qu'il s'agit de micas de type phengitique, relativement pauvres en aluminium.

3 - Les micaschistes présentent des cristallinités un peu supérieures à celles du Cambrien. Il s'agit là de la cristallinité maximum que puisse atteindre un mica dans des micaschistes.

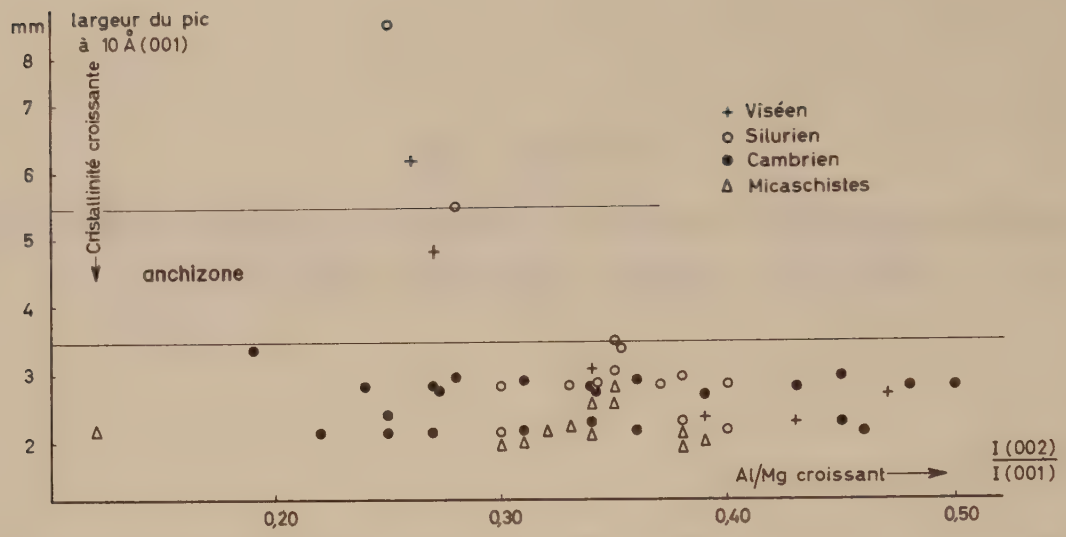


Fig. 89 - Paléozoïque de la Montagne Noire. Caractérisation des minéraux micacés selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

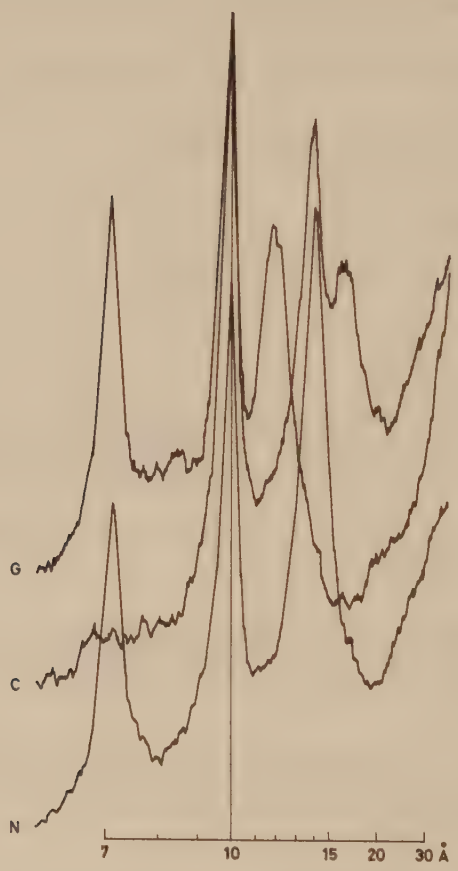


Fig. 90 - Corrensite dans le Cambrien supérieur de la Montagne Noire.
N : non traité, C : chauffé 4 h à 490° C, G : en présence d'éthylène-glycol

II - LES MINERAUX GONFLANTS DU CAMBRIEN

La généralisation du faciès à illite et chlorite dans le Paléozoïque et la forte cristallinité atteinte par l'illite témoignent d'un métamorphisme plus poussé que celui qu'on pouvait estimer. Malgré l'intensité de cette action métamorphique, on note la présence, dans le Cambrien, de minéraux argileux gonflants.

1 - Montmorillonite

Identifiée dans 3 échantillons, c'est une montmorillonite typique, d'espacement basal à 11,3 Å, passant à 11,5 après saturation par K^+, et 14,0 après saturation par Mg^{+2}. Dans tous les cas l'éthylène-glycol provoque un gonflement à 17 Å.

Notons ici que deux schistes du Viséen ont fourni une montmorillonite dont les caractéristiques sont voisines, mais dont la capacité de gonflement se trouve fortement inhibée par la saturation K^+. Il s'agit probablement de feuillets de type micacé, à charge foliaire importante, qui n'ont pas trouvé dans leur milieu suffisamment de potassium pour s'illitiser.

2 - Corrensite

Un échantillon de la formation des schistes et grès de Barroubio (Cambrien supérieur) présente, outre l'illite et la chlorite, une corrensite typique, c'est-à-dire un interstratifié régulier chlorite-montmorillonite (14_c-14_M), se tassant à 12 Å au chauffage, gonflant à 15,5 Å au glycol (fig. 90). Selon ESQUEVIN (communication), un tel minéral aurait été identifié au Centre de Recherches de Pau dans le Cambrien inférieur du Minervois. Dans le cas présent, l'échantillon à corrensite provient d'un affleurement situé sur la route N 607 à 18 km au sud de St Pons.

Il est impossible de proposer une interprétation génétique de la présence de corrensite sur les données d'un seul échantillon, dans l'ignorance du contexte sédimentologique et géochimique. On peut cependant remarquer que ce n'est pas la première fois que ce minéral est identifié dans le Cambrien : les chlorites décrites dans le Cambrien du Maroc (MILLOT,1954) se sont révélées être en fait des corrensites (communication de J. LUCAS).

III - CONCLUSION

L'échantillonnage abondant et dispersé réalisé dans la Montagne Noire permet d'avancer quelques conclusions sur les minéraux argileux dans les niveaux schisteux du Paléozoïque de cette région.

- Les minéraux argileux sont l'illite et la chlorite.

- La cristallinité de l'illite indique que le seuil du métamorphisme a été atteint pour le Paléozoïque supérieur, et dépassé pour le Paléozoïque inférieur.

- Malgré l'intensité des recristallisations, des minéraux argileux gonflants de type montmorillonite et corrensite sont présents dans le Cambrien. Ils sont probablement liés à des conditions géochimiques très particulières, puisqu'il est exceptionnel de les rencontrer dans les zones touchées par le métamorphisme.

- Les minéraux argileux donnent ici un nouvel exemple de leur sensibilité aux changements de conditions thermodynamiques. Le métamorphisme hercynien a étendu son influence bien au delà des limites que la pétrographie classique permet de déceler.

CHAPITRE XIV

LES MICASCHISTES DES PYRÉNÉES ORIENTALES

Les formations sédimentaires et métamorphiques des Pyrénées orientales sont bien connues par les travaux récents de CAVET (1957, 1965) et GUITARD (1965, 1970) (1).

Sous le Gothlandien daté s'étend en concordance une épaisse série schisteuse, nommée "schistes de Jujols", azoïque, attribuée à l'Ordovicien. Ces schistes lustrés deviennent de plus en plus cristallins au fur et à mesure que, descendant dans la série, on approche des massifs métamorphiques. Ils passent alors à de véritables micaschistes, très riches en micas blancs, dits "schistes de Canaveilles".

I - SITUATION

Deux coupes ont été faites dans le but de rechercher les variations minéralogiques accompagnant ce gradient de métamorphisme (fig. 91).

1 - L'enveloppe schisteuse du massif de l'Agly a été traversée depuis le Gothlandien à Monograptus d'Estagel jusqu'aux gneiss de la Bergerie, en passant par les micaschistes à chlorite de Força-Real et les micaschistes à biotite du col de la Bataille et de la région de Montner.

2 - Les schistes de la vallée de la Têt ont été échantillonnés depuis les niveaux datés du Gothlandien et du Dévonien, dans le synclinal de Villefranche-de-Conflent, jusqu'aux gneiss du Canigou, à travers les schistes satinés de Jujols et Canaveilles.

On espérait pouvoir isoler les micas, les analyser, et suivre leur évolution cristallochimique au cours du métamorphisme. L'extrême finesse des minéraux n'a pas permis d'obtenir des micas assez purs, assez exempts de chlorite en particulier, pour que leur analyse chimique soit utilisable.

II - LA MUSCOVITE DES SCHISTES DE CANAVEILLES

Seul un micaschiste échantillonné près du village de Canaveilles a livré un mica pur, dont les caractéristiques chimiques sont les suivantes :

Il s'agit d'une muscovite dioctaédrique, légèrement ferrifère, dont la charge foliaire (0,86) est un peu inférieure à celle d'une muscovite idéale (1,00). Un métamorphisme plus poussé devrait avoir pour effet d'augmenter cette charge et, corrélativement, la teneur en alcalins au niveau de l'interfoliaire.

---

(1) Je remercie MM. CAVET et GUITARD d'avoir bien voulu me guider sur le terrain pour le prélèvement des échantillons.

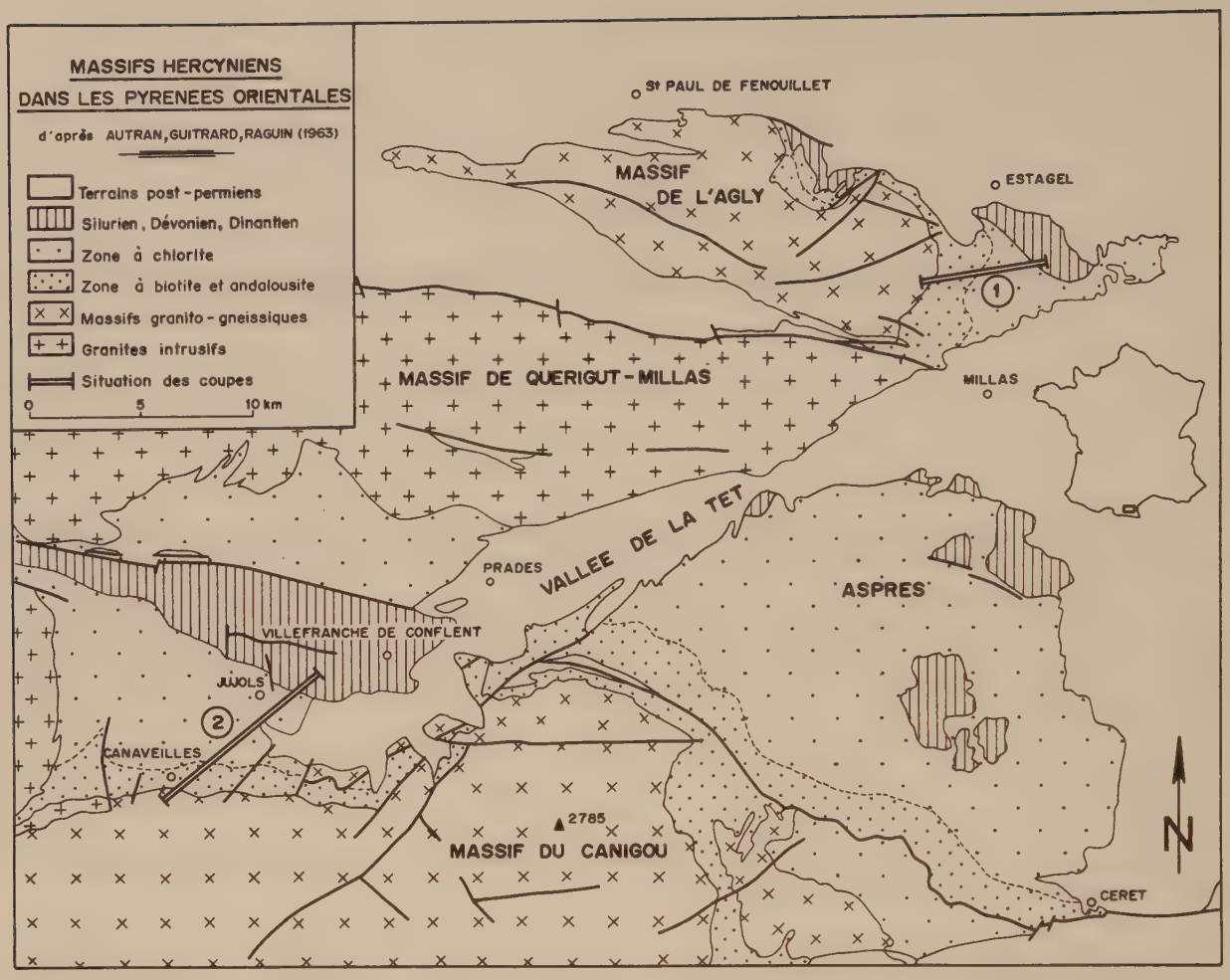


Fig. 91 - Esquisse géologique des Pyrénées orientales, Situation des coupes

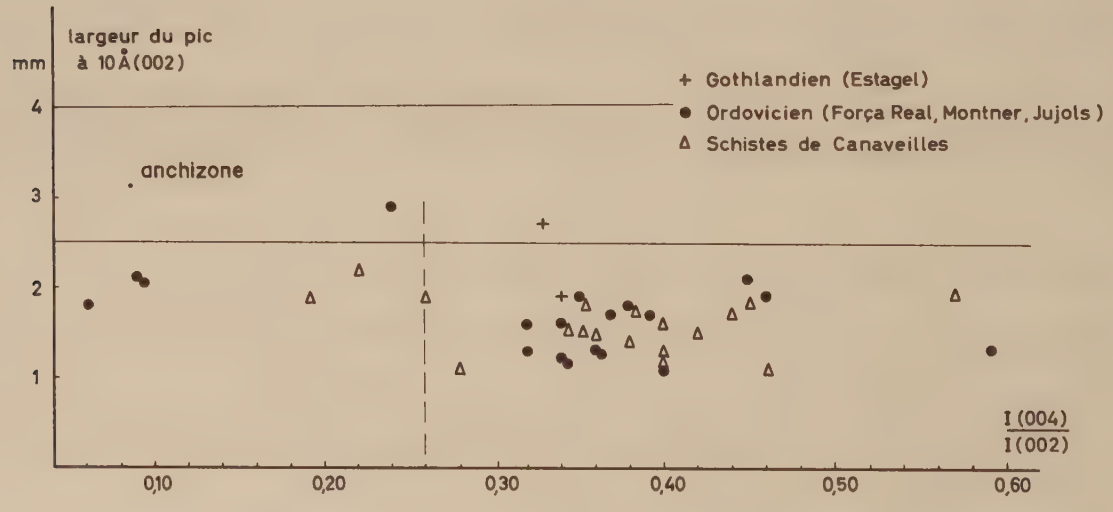


Fig. 92 - Pyrénées orientales. Caractérisation des illites dans le Paléozoïque épimétamorphique.

Tableau XLIV

Schistes de Canaveilles. Etude cristallochimique d'une muscovite (P 62)

SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	Mn_3O_4	TiO_2	Na_2O	K_2O	P.F.	Total
48,3	30,8	2,5	0,4	5,5	0,076	0,56	1,05	7,83	4,81	101,80

IV			VI						XII			
Si	Al	Charge	Al	Fe^{+3}	Mg	Ti	Nb. cations	Charge	Ca	Na	K	Charge
3,15	0,85	-0,85	1,52	0,27	0,25	0,03	2,07	-0,01	0,03	0,14	0,66	+0,86

III - LA CRISTALLINITE DES MINERAUX MICACES

L'ensemble des données est reporté sur la figure 92. La cristallinité est celle des zones métamorphiques, même pour le Gothlandien d'Estagel et du col de la Dona. L'éparpillement horizontal indique une assez grande variation de constitution chimique, en particulier pour les schistes de Jujols.

IV - LA PYROPHYLLITE DU GOTHLANDIEN

Le Gothlandien rutilant de Serdinya (Vallée de la Têt) s'est avéré riche en pyrophyllite. Ce sont des pélites argileuses, rouge à rose, où la pyrophyllite, bien visible en lame mince, apparaît en taches ou en filonnets, associée à du quartz. Elle est manifestement secondaire, diagénétique, métamorphique ou hydrothermale.

V - DONNEES GEOCHRONOLOGIQUES

Des mesures d'âge ont été faites au Centre de Sédimentologie et Géochimie de la Surface de Strasbourg (tableau XLV).

Tableau XLV

Pyrénées orientales. Dosages du rubidium et du strontium.

Echantillon		teneur en Rb ppm	teneur en Sr ppm	$87_{Rb}/86_{Sr}$	$87_{Sr}/86_{Sr}$
ROCHE TOTALE	P 12	197,9	60,4	9,497	0,7522
	P 18	201,3	111,9	5,116	0,7361
	P 35	92,3	37,6	7,128	0,7483
FRACTION < 2 µ	P 12	265,0	51,6	14,890	0,7752
	P 18	292,8	138,9	6,112	0,7296
	P 35	225,6	81,8	6,539	0,7491

P 12 Schiste du Dévonien inférieur à débit en bâtons de craie (deux schistosités). Serdinya (Vallée de la Têt).

P 18 Schiste gréseux du Gothlandien supérieur (Caradoc). Serdinya.

P 35 Schiste noir à Monograptus (Gothlandien). Estagel (enveloppe du massif de l'Agly).

Les résultats des mesures sont exprimés graphiquement selon la méthode des isochrones (fig. 93), la constante de désintégration du rubidium 87 utilisée étant de $1,47.10^{-11}$ années.

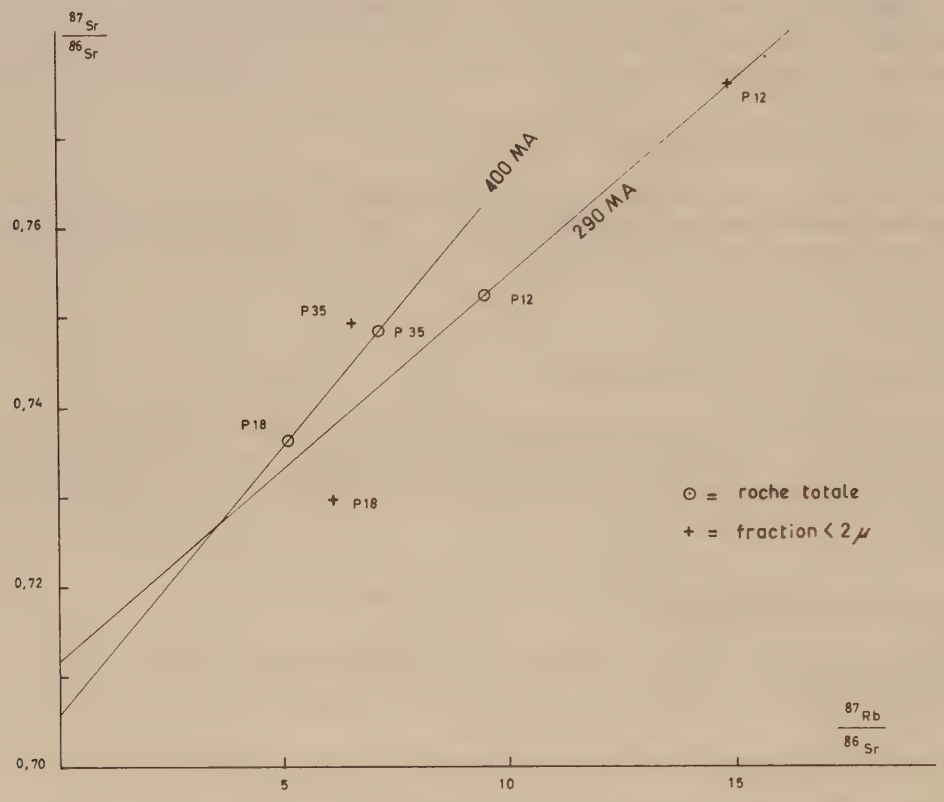


Fig. 93 - Pyrénées orientales. Données géochronologiques par la méthode rubidium-strontium.

La roche totale et la fraction fine de l'échantillon P 12 permettent de tracer une isochrone correspondant à un âge de 290 MA. C'est l'âge de la limite Westphalien-Stéphanien, celui de la phase asturienne de l'orogenèse hercynienne. Ce schiste dévonien a donc subi une ré-homogénéisation isotopique lors des phénomènes orogéniques hercyniens.

L'échantillon P 35 a une fraction fine dont la composition isotopique est très voisine de celle de la roche totale. L'échantillon P 18 a une fraction fine qui a subi une ré-homogénéisation récente, située dans le courant du Tertiaire. Mais les deux roches totales sont sur l'isochrone 400 MA. C'est le sommet du Gothlandien, c'est-à-dire l'époque de la sédimentation.

Ces mesures isolées sont insuffisantes pour permettre des conclusions sur l'histoire de cette région. Mais elles indiquent déjà tout le parti qu'on pourrait tirer d'une série de mesures de ce genre. On devrait ainsi préciser l'époque des actions métamorphiques, et leur intensité, en relation avec la granulométrie, la minéralogie et la géochimie des sédiments.

QUATRIÈME PARTIE

L'ÉVOLUTION DES GRANDES FAMILLES DE MINÉRAUX ARGILEUX DANS LA DIAGENÈSE PROFONDE ET L'ÉPIZONE MÉTAMORPHIQUE

SYNTHÈSE ET INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS PRÉSENTÉS DANS LES ÉTUDES RÉGIONALES QUI PRÉCÈDENT

VUE D'ENSEMBLE SUR LES MÉCANISMES RÉGISSANT L'ÉVOLUTION DES SILICATES A LA SURFACE DE L'ÉCORCE ET EN PARTICULIER DANS LA ZONE DE DIAGENÈSE

CHAPITRE I

LES MINÉRAUX DU GROUPE DE LA KAOLINITE

Ce groupe, auquel on a donné le nom général de "kandites" (BROWN, 1955), est représenté par les quatre espèces principales : kaolinite, halloysite, dickite et nacrite. Kaolinite et dickite ont été identifiées à maintes reprises dans les chapitres qui précèdent. Pour comprendre leurs conditions de gisement et d'évolution, je présenterai une synthèse des observations faites ici, et je les comparerai aux données bibliographiques dont on dispose. Avant cela, un bref rappel est nécessaire, pour situer les minéraux argileux du groupe de la kaolinite dans leur contexte cristallographique et géologique.

I - DONNEES CRISTALLOGRAPHIQUES

Le premier travail d'ensemble sur les minéraux du groupe de la kaolinite est celui de ROSS et KERR (1931). Des travaux suivront, apportant des précisions sur les paramètres structuraux et les variétés polymorphes. Les principales étapes de ces recherches sont les suivantes :

- kaolinite (GRUNER, 1932; BRINDLEY et ROBINSON, 1946; BRINDLEY et NAKAHIRA, 1958).
- halloysite (ROSS et KERR, 1934; HENDRICKS, 1938; BRINDLEY, ROBINSON et GOODYEAR, 1948),
- dickite (GRUNER, 1932; HENDRICKS, 1938; NEWNHAM et BRINDLEY, 1956, 1961),
- nacrite (GRUNER, 1933; HENDRICKS, 1939).

Quant aux variétés polymorphes de ces différents types structuraux, elles ont été analysées par HENDRICKS (1939), NEWNHAM et BRINDLEY (1961), SHUTOV, ALEXANDROVA et LOSIEVSKAYA (1966).

Il faut citer enfin les deux mises au point de BRINDLEY (1951, 1961), qui offrent un accès facile à l'ensemble de ces données.

II - GEOLOGIE DES MINERAUX ARGILEUX KAOLINIQUES

Les minéraux kaoliniques identifiés dans les séries sédimentaires qu'on vient d'étudier se présentent comme un des éléments de la fraction argileuse des roches. Dans la plupart des cas il s'agit d'un constituant mineur, mêlé aux autres minéraux argileux, au sein d'ensembles essentiellement détritiques.

C'est volontairement que le choix s'est porté sur des séries détritiques monotones, afin de disposer d'ensembles lithologiquement comparables, dans des conditions de gisements différentes. On ne s'étonnera donc pas que je ne dispose d'aucune formation exclusivement kaolinique. Ce travail n'est qu'une approche globale de la diagenèse des minéraux argileux. Il devrait être suivi utilement par l'étude des transformations diagénétiques individuelles des groupes minéralogiques, lorsque le phénomène sédimentaire les a isolés et concentrés dans la nature.

Il me paraît donc nécessaire de rappeler brièvement les grands faciès kaoliniques, en indiquant au passage les connaissances qu'on a de leur évolution diagénétique. L'essentiel se trouve dans MILLOT (1964). Il apparaît que la genèse des minéraux kaoliniques s'effectue principalement dans quatre situations bien différentes.

1 - L'altération superficielle en milieu lessivé, acide, et les kaolins sédimentaires

Un tel milieu, réalisé dans les régions à climat chaud et humide, engendre la kaolinite dans les profils pédologiques. C'est le phénomène de la latéritisation. C'est sans doute là que s'élabore la presque totalité de la kaolinite qui parcourt le cycle géologique. Les jeux de l'érosion et de la sédimentation vont entraîner ensuite ces minéraux kaoliniques, pour les concentrer dans des poches ou des bassins continentaux (le sidérolitique), ou aux bordures des bassins marins voisins.

Ainsi prennent naissance les gisements de kaolin sédimentaires. BATES (1964) a présenté une revue géologique et minéralogique de tels gisements aux Etats-Unis. Certains d'entre eux, d'ailleurs, résultent de la transformation diagénétique d'argiles illitiques sous l'influence d'eaux acides chargées en matières organiques (KELLER, 1968). Des recristallisations diagénétiques diverses peuvent se faire au sein des masses argileuses kaoliniques, conduisant à la kaolinite, l'halloysite, la dickite, la montmorillonite ou l'illite (KULBICKI, 1954).

A l'échelle de la structure, les observations de SHUTOV, ALEXANDROVA, et LOSIEVSKAYA (1966) montrent une évolution générale dans les parties supérieures du cycle sédimentaire (altération, sédimentation, diagenèse précoce). La structure triclinique ordonnée (T), caractéristique de la zone d'altération, passe progressivement à un type pseudomonoclinique désordonné (pMd), propre aux dépôts marins. La structure triclinique est métastable. La structure pseudomonoclinique, qui la suit, sera d'autant plus désordonnée que les remaniements sédimentaires auront été plus poussés. Ces conclusions d'ordre général avaient été déjà avancées par LAFOND (1965) à propos du Quaternaire du Cameroun et du Gabon : la kaolinite des lithomarges latéritiques livrées à l'érosion est de type T (triclinique) ; au cours de l'altération superficielle et du transport vers les estuaires, on observe la transformation T → pM → métahalloysite. Après la sédimentation, la diagenèse réalise une régularisation des réseaux : métahalloysite → pM (kaolinite pseudomonoclinique).

2 - Les diagenèses acides

Des transformations de grande ampleur peuvent avoir lieu sous l'influence de solutions acides (KELLER, 1968). A une échelle plus réduite, celle d'une strate au sein d'une séquence lithologique, peuvent se produire des recristallisations très variées. Elles seront décrites plus loin à propos des séries marines.

3 - Les tonstein

Ils constituent un matériel de choix pour étudier la recristallisation des minéraux kaoliniques en profondeur. L'origine de cette kaolinite est controversée, encore que l'hypothèse d'une évolution in situ de verres et silicates volcaniques ait beaucoup de vraisemblance. Il y aurait donc une première diagenèse, conduisant à la formation massive de kaolinite. On en voit la trace dans la transformation particulière subie par les micas détritiques, qui évoluent en leverriérite, association feuillets à feuillets de kaolinite et de mica.

L'enfouissement des tonstein peut se traduire par une deuxième diagenèse. STADLER (1963) a décrit les tonstein du Carbonifère supérieur dans le forage de Munsterland 1. Entre 3 000 et 3 300 m de profondeur, la kaolinite des tonstein subit une séricitisation et chloritisation complètes. Parallèlement la sidérite fait place à l'ankérite. C'est une évolution irréversible, traduisant l'instabilité de la kaolinite au-dessous d'une certaine zone de l'écorce. La kaolinite persiste dans ce cas jusqu'à une profondeur où la température est, actuellement, de 110°C.

4 - Les gîtes hydrothermaux

Les gisements de kaolin hydrothermaux sont assez bien connus à cause de l'intérêt économique qu'ils présentent. Il ne semble pas qu'ils constituent un élément important, en volume, dans le cycle géologique des minéraux kaoliniques. Il faut cependant les évoquer ici, car les conditions de l'hydrothermalisme sont assez proches de celles de la diagenèse profonde. L'étude des quartz du gisement de Ploemeur a révélé que des températures de 150° à 300°C avaient régné lors de

l'altération hydrothermale du granite (NICOLAS, 1956). Ces températures sont celles de la diagenèse profonde, où, cependant, la kaolinite est systématiquement absente.

La présence de kaolinite dans les gîtes hydrothermaux et son absence dans la diagenèse profonde ne sont pas contradictoires. Hydrothermalisme et diagenèse s'exercent dans des domaines de température voisins, situés autour de 200°C, mais s'opposent par plusieurs caractères. Dans le premier cas, la pression de vapeur d'eau est élevée, la pression totale est moyenne, la porosité souvent élevée (par fracturation), les solutions peuvent être acides et peu concentrées ; dans le cas de la diagenèse profonde, en revanche, la pression partielle de vapeur d'eau est sans doute moins élevée, la pression totale très forte, la porosité presque nulle, et les solutions sont basiques et concentrées.

On conçoit ainsi que les néoformations hydrothermales et diagénétiques puissent s'opposer de façon aussi nette. Toutefois, certaines conditions de type hydrothermal peuvent se trouver réalisées, localement, dans la diagenèse, et conduire à la dickite, ainsi qu'on le verra plus loin à propos du forage d'Adamswiller.

Le rôle de l'eau et de ses possibilités de circulation a été mis en évidence par SZADECZKY-KARDOSS et coll. (1968) dans leurs essais de métamorphisme expérimental à partir de matériel argileux (shale) à illite et chlorite. Pour des pressions de vapeur d'eau de 100 à 2 000 atm et des porosités de 15 à 20 %, il se développe de la montmorillonite entre 300 et 500°C (voir chapitre suivant).

III - LA KAOLINITE DANS LA SEDIMENTOGENESE ET LA DIAGENESE MOYENNE

La kaolinite est un minéral caractéristique des altérations continentales. C'est donc essentiellement comme minéral détritique qu'elle apparaîtra dans les séries marines. Toutefois, les solutions interstitielles de la diagenèse pourront provoquer des néoformations.

1 - La kaolinite minéral détritique, indicateur paléogéographique

Les exemples sont nombreux (MILLOT, 1964), où la présence de kaolinite témoigne de climats kaolinisants sur les continents voisins. Elle témoigne aussi de la proximité des rivages. Les particules de kaolinite sont, en effet, de taille généralement plus grande que les autres minéraux argileux, et sont entraînées moins loin vers les zones de haute mer.

Les séries étudiées dans ce mémoire en offrent trois exemples.

a) Le bassin de sédimentation des "Terres Noires" jurassiques était en bordure d'un continent, situé à l'emplacement de l'actuel Massif Central, où les altérations développaient de la kaolinite. La teneur en kaolinite décroît vers l'est, vers le large. L'existence d'un seuil nord-sud à l'ouest de Gap a été démontrée (ARTRU, 1967). C'est la "dorsale dauphinoise", au delà de laquelle la kaolinite est rare, sinon absente. On a montré (p. 157) que la coupe est-ouest réalisée ne permettait pas de préciser ces variations sédimentologiques, parce que les effets du métamorphisme alpin venaient les oblitérer. En revanche, les quatre forages AL 1, ML 1, GL 1, et PdM 1 ont donné d'utiles indications. Les trois premiers sont dans une zone subsidente du bassin : la kaolinite y est rare. Pont de Mirabeau est situé sur un haut-fond, prolongement provençal de la "dorsale dauphinoise" (ARTRU, communication) : la kaolinite y est plus abondante, témoignant du caractère localement détritique de la sédimentation.

b) Le Paléozoïque du bassin de Polignac (Sahara) présente l'association constante d'illite ouverte, de kaolinite et de chlorite. L'étude du rapport illite/kaolinite a permis de montrer que la kaolinite était toujours plus abondante dans la partie nord-est du bassin, suggérant ainsi une ouverture vers la pleine mer en direction du sud-ouest.

c) L'Oligocène de Pierrefeu se signale par une kaolinite désordonnée, qu'on a pu mettre en rapport avec les conditions climatiques et tectoniques de cette période.

De nombreuses variations sédimentologiques en relation avec la paléogéographie, comme celles des "terres noires" et celles du bassin de Polignac, ont été compilées par PARHAM (1966). L'analyse bibliographique confirme l'appartenance de la kaolinite aux zones bordières des bassins.

2 - Remplacement ou néoformation de kaolinite par diagenèse

A - Circulation de solutions alcalines : remplacement de la kaolinite

La destruction de la kaolinite au cours de la diagenèse peut s'effectuer de deux façons :

a) La première correspond au phénomène général d'instabilité de la kaolinite dans l'enfouissement profond. La question sera traitée plus loin.

b) La seconde représente des phénomènes locaux, limités, de remplacement ou épigénie. Un exemple en est donné par l'étude du Siluro-dévonien à pyrophyllite du Sahara, où la calcite des organismes fossiles est remplacée par de la kaolinite, celle-ci se détruisant ensuite pour faire place à la pyrophyllite (p. 131). Mais le cas le plus fréquent est celui de l'illitisation de la kaolinite. La transformation de kaolinite en illite par le milieu marin n'a pas été démontrée. En revanche, les solutions interstitielles de la diagenèse, basiques et concentrées, peuvent provoquer l'illitisation du ciment kaolinique des grès (CHELIPOV, ERMOLOVA et ORLOVA, 1959; KULBICKI et MILLOT, 1961; RUMEAU et KULBICKI, 1966). C'est ainsi que l'absence de kaolinite dans les grès du Trias des forages PA 1 et OA 1bis (p. 109), et la présence d'une illite très bien cristallisée, ont été interprétées comme le résultat d'une illitisation de la kaolinite, sous l'influence des eaux salées du Trias supérieur.

B - Circulation de solutions acides : néoformation de la kaolinite

La néoformation de kaolinite dans la diagenèse a été souvent décrite (MILLOT, 1964, p. 381). Elle obéit à des conditions inverses de celles qu'on vient d'évoquer. Elle nécessite donc des solutions acides et diluées. Les grès réalisent un milieu favorable à de telles circulations, sauf dans le cas de voisinage salifère (eaux salées des gisements de pétrole, séries évaporitiques susjacentes).

Le développement de kaolinite dans les grès a fait l'objet de nombreuses observations (VATAN, 1939; GLASS, POTTER et SIEVER, 1956; SMOOT, 1960; KULBICKI et MILLOT, 1961). Des observations plus récentes ont montré que ces minéraux à 7 Å des grès, souvent largement cristallisés en tablettes, en éventails, en accordéons, étaient de la dickite (FERRERO et KUBLER, 1964; CASSAN et LUCAS, 1966). A Logbaba (p. 69) trois niveaux gréseux, entre 1 500 et 2 000 m de profondeur sont cimentés par une dickite bien cristallisée, dont l'aspect microscopique est identique à celui de la dickite du Cambrien d'Hassi Messaoud (CASSAN et LUCAS, 1966).

Les grès ne sont pas le milieu indispensable pour la néoformation diagénétique de kaolinite. Il suffit que la percolation de solutions acides diluées soit assurée. Cela peut se faire dans les faciès argileux (KULBICKI, 1953, 1954; KELLER, 1958), et même dans les roches calcaires et dolomitiques : SCHMIDT (1965) observe une kaolinite automorphe en accordéons atteignant 0, 3 mm, cimentant les fractures des calcaires dolomitiques du Jurassique supérieur en Allemagne du nord.

La mise en évidence de dickite à Logbaba et à Hassi-Messaoud dans des conditions de moyenne profondeur, ainsi que la multiplicité des observations de dickite, dont il sera question plus loin, permettent de s'interroger sur la nature des kaolinites diagénétiques observées jusqu'à ce jour. Il est fort probable que de nouvelles déterminations diffractométriques permettraient de reconnaître la dickite dans bon nombre de ces phyllites en éventail, si fréquentes dans les faciès gréseux, et attribuées jusqu'ici à la kaolinite.

IV - L'EVOLUTION DES MINERAUX KAOLINIQUES DANS LA DIAGENESE PROFONDE ET L'ANCHIZONE

1 - La destruction de la kaolinite au cours de l'enfouissement

A - Les données des forages profonds

Les forages étudiés dans ce mémoire ont permis d'observer la zone inférieure de stabilité de la kaolinite. J'ai discuté dans chaque cas particulier la part qui revient aux variations sédimentologiques, et celle qu'on peut attribuer à la diagenèse d'enfouissement. Quatre de ces séries sont reportées sur la figure 94, et comparées aux données analogues dont on dispose. Les profondeurs et températures de destruction sont très diverses. Cela n'est pas étonnant quand on sait l'importance du milieu interstitiel (pH, force ionique) sur la stabilité des minéraux et l'indépendance qui

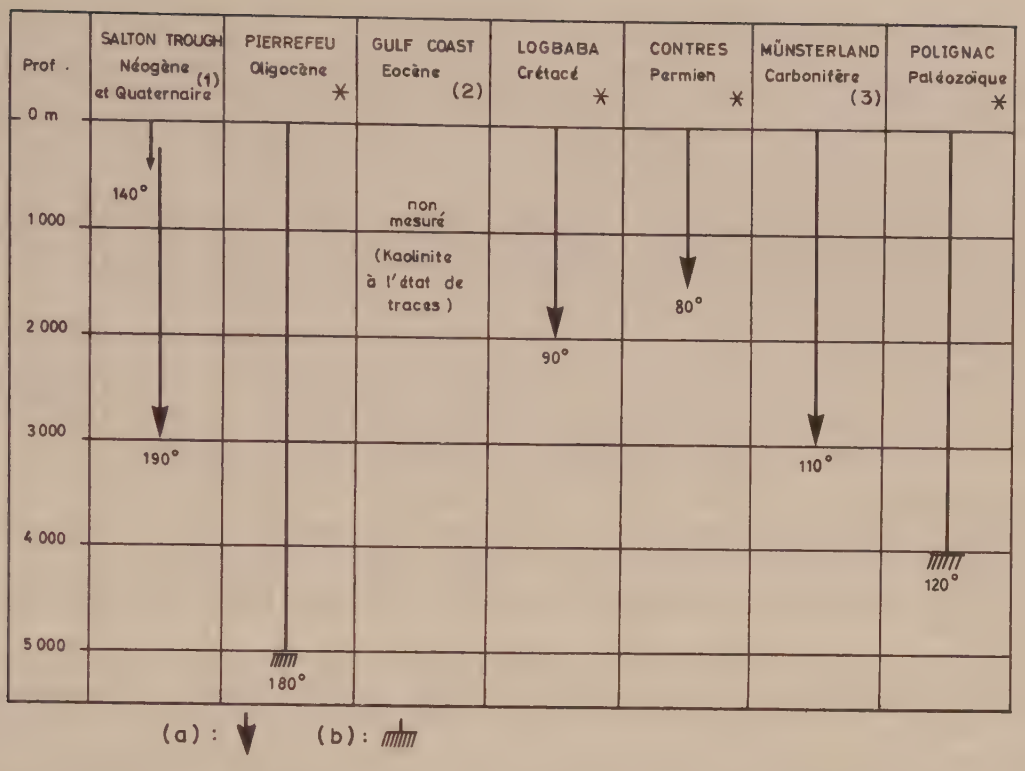


Fig. 94 - La destruction de la kaolinite au cours de l'enfouissement. Les températures indiquées sont les températures mesurées lors du forage.
(a) disparition de la kaolinite
(b) persistance de la kaolinite jusqu'au fond du forage
(1) MUFFLER et WHITE (1969)
(2) BURST (1959, 1969)
(3) SCHERP (1963)
* ce mémoire

peut exister entre ce milieu et les gradients physiques d'enfouissement. Mais, statistiquement, les solutions interstitielles se concentrent en profondeur, et l'instabilité de la kaolinite est atteinte tôt au tard.

La persistance de la kaolinite à Pierrefeu constitue une anomalie, dont on a évoqué les raisons possibles (p. 146). Dans le bassin de Polignac, la température maximale atteint 120°C, mais l'abondance de la matière organique peut être invoquée comme un élément protecteur de la kaolinite détritique. Un cas de persistance de la kaolinite dans une série crétacée et tertiaire, atteignant 8 000 m d'épaisseur, a été décrit (CARRIGY et MELLON, 1964). Les forages ayant traversé les "terres noires" du bassin de la Durance ne présentent plus de kaolinite au-dessous de profondeurs variables : 1 700 m pour Aurel, 3 000 m pour Montagne de Lure, 4 100 m pour Grand Luberon. Ces chiffres ne sont pas directement utilisables. En effet, j'ai dit que les évènements tectoniques tertiaires avaient rendu bien hasardeuse la détermination de l'enfouissement maximal subi par les sédiments. Enfin, l'absence de kaolinite dans les séries d'Adrar Zougar, du Trias gréseux saharien, du Permien d'Adamswiller a été discutée dans chaque cas.

En conclusion, l'instabilité de la kaolinite en profondeur est soumise à des facteurs géochimiques, qui ne sont pas rigoureusement liés aux gradients réguliers de température et de pression. La kaolinite peut donc disparaître précocement (Logbaba, Contres, OA 1, PA 1), ou persister longtemps à des températures relativement élevées (Pierrefeu, Polignac). Ainsi est-il impossible de considérer l'absence de kaolinite comme un indicateur précis de l'enfouissement subi par un sédiment.

Il n'en reste pas moins vrai que le seuil d'instabilité existe, qu'il est situé à des profondeurs variables, et qu'une diagenèse d'enfouissement tant soit peu poussée l'atteint toujours. L'absence de kaolinite dans les vieilles séries en fournit une preuve statistique.

B - L'absence de la kaolinite dans les vieilles séries

Depuis que la diffraction des rayons X a été appliquée à la sédimentologie, une masse considérable de renseignements sur la composition minéralogique des sédiments nous a été donnée. Il s'est avéré rapidement que les schistes paléozoïques avaient l'illite et la chlorite comme phyllosilicates essentiels (FAIRBAIRN, 1943; BATES, 1947; GRIM, 1951; FLAWN, 1953; GRIM, BRADLEY et WHITE, 1957; WEAVER, 1958, 1959).

Les centaines de mesures que j'ai effectuées dans les séries antéhercyniennes françaises en apportent une preuve supplémentaire. Le Paléozoïque du Massif Armoricain et de la Montagne Noire sont à illite et chlorite, à de rares exceptions près. Je reviendrai, à propos de l'illite, sur ce "faciès à illite et chlorite", et sur l'"anchizone" qu'il permet de définir.

Des travaux récents font ressortir, eux aussi, l'absence de kaolinite dans les vieilles séries en Europe Centrale (STARKE, 1968), en Russie (KOSSOVSKAYA et SHUTOV, 1963; LOGVINENKO et KARPOVA, 1968), au Japon (OINUMA et KOBAYASHI, 1966) et aux Etats-Unis (PARHAM, 1966). Il est intéressant de s'arrêter aux observations de PARHAM. Celui-ci constate la rareté de la kaolinite dans les sédiments anciens, et propose trois hypothèses pour l'expliquer :

1) la kaolinite aurait été détruite par enfouissement au cours du temps ;

2) les zones bordières des bassins, les plus riches en kaolinite, auraient été érodées préférentiellement (c'est l'hypothèse de WEAVER, 1958) ;

3) les conditions climatiques des temps anciens n'auraient pas été kaolinisantes (hypothèse de RATEEV, 1963).

PARHAM se prononce en faveur des hypothèses 2 et 3. Pour ma part, sans nier l'incidence possible d'une paléoclimatologie, ni les effets de l'érosion, je pense que la destruction progressive de la kaolinite par la diagenèse d'enfouissement est un fait démontré et de portée générale. Les données que j'apporte, et les travaux que j'ai cités, en fournissent des exemples suffisamment clairs et nombreux. On a pu montrer, d'ailleurs, que l'instabilité de la kaolinite était précédée par des stades de réorganisation du réseau passant par la dickite.

2 - La dickite dans la zone de diagenèse

La dickite a été identifiée à plusieurs reprises dans les séries étudiées ici.

a) Grès crétacés de Logbaba

Trois niveaux gréseux, entre 1 500 et 2 000 m de profondeur, sont cimentés par une dickite bien cristallisée, en larges éventails, se développant aux dépens de la matrice argileuse du grès et des micas détritiques (p. 69).

b) Argilites permiennes d'Adamswiller

Ce sont des argilites rouges très compactes, indurées, fracturées par une tectonique vive (les pendages atteignent 30°). Les multiples fractures, observables sur les carottes, sont le plus souvent des plans de glissement (surfaces striées et lustrées). La dickite forme un enduit blanchâtre dans ces fractures, et peut se concentrer à leur intersection (p. 153). On peut alors l'extraire avec la pointe d'un couteau. Un tel gisement conduit tout naturellement à penser, que la dickite a pris naissance par circulation de solutions acides dans les fissures, aux dépens du matériel argileux encaissant (illite et chlorite). Il s'agit donc d'une diagenèse tardive, post-tectonique, ou mieux tarditectonique, car la dickite est elle aussi affectée par les frottements. Les conditions sont celles de l'hydrothermalisme. La température actuelle au fond (70° C) est certainement très inférieure à celle qui régnait avant la surrection hercynienne. Cet hydrothermalisme acide n'est sans doute pas sans rapport avec le volcanisme ignimbritique qu'on connaît au Permien dans des zones toutes proches (massif du Nideck, SAUCIER, MILLOT et JOST, 1959).

c) Autres observations de dickite

La dickite était considérée comme très rare dans les roches sédimentaires en dehors de toute action hydrothermale manifeste. Or, depuis vingt ans, les observations se sont multipliées.

C'est comme ciment des grès, c'est-à-dire comme à Logbaba, que la dickite apparaît le plus souvent en Grande-Bretagne (HEMINGWAY et BRINDLEY, 1948; BROWN et SMITHSON, 1953,

SMITHSON et BROWN, 1954, 1957), au Sahara (FERRERO et KÜBLER, 1964; CASSAN et LUCAS, 1966; PACQUET, 1969) et en Australie (BAYLISS, LOUGHNAN et STANDARD, 1965).

On la signale aussi dans le sidérolithique (KULBICKI, 1953, 1954), dans des schistes (RADCZEWSKI, 1951) et dans des calcaires (DUNHAM, CLARINGBULL et BANNISTER, 1948; HAYES, 1967; SCHROEDER et HAYES, 1968).

Ces nombreux gisements correspondent à des conditions de genèse fort différentes, bien entendu, mais ils appartiennent tous à la zone de diagenèse. Ils s'inscrivent tous dans le cadre d'une évolution aux limites d'un bassin, sans qu'intervienne aucune action magmatique ou hydrothermale évidente. Les principaux facteurs en jeu sont les gradients physiques d'enfouissement, et la géochimie des solutions interstitielles. Il peut s'y adjoindre des éléments facultatifs, tels qu'une fracturation tectonique, un flux thermique particulièrement élevé, ou la circulation d'eaux vadoses d'une composition inhabituelle.

C'est là encore le domaine de la diagenèse. Il faut désormais compter la dickite comme un minéral caractéristique de la zone de diagenèse.

d) L'évolution cristallographique kaolinite → dickite → nacrite

J'ai déjà dit comment SHUTOV, ALEXANDROVA et LOSIEVSKAYA (1966) avaient démontré que la structure triclinique de la kaolinite des manteaux d'altération se dégradait au cours du transport et de la sédimentation. Ces mêmes auteurs, élargissant les conclusions qu'ils avaient données cinq ans plus tôt (SHUTOV et DOLMATOVA, 1961), présentent le schéma général de l'évolution en profondeur des minéraux du groupe de la kaolinite. On peut le résumer comme suit.

I - Néoformation dans l'altération ferrallitique : kaolinite triclinique T.

II - Dégradation au cours des remaniements continentaux, marins, et de la diagenèse précoce : kaolinite pseudomonoclinique désordonnée pM.

La structure triclinique est métastable car les ions OH inférieurs de la couche octaédrique et les ions O supérieurs de la couche tétraédrique forment des saillies et des rentrants qui, au lieu de s'emboîter, s'opposent. Les efforts, auxquels sont soumises les particules au cours des transports, provoquent un double désordre :

- des micro-déplacements irréguliers des feuillets sur l'axe b déforment le réseau. L'angle α prend une valeur statistique moyenne de 90°. La structure est pseudo-monoclinique. C'est la kaolinite la plus fréquente dans les sédiments lacustres.

- en outre, la périodicité sur l'axe c est perturbée. Les feuillets sont tournés les uns par rapport aux autres de 60°, sans ordre. La kaolinite est pseudo-monoclinique désordonnée : c'est celle des sédiments marins.

III - Agradation

- Dans l'épigenèse profonde (fig. 96) : kaolinite → kaolinite-dickite → dickite. Avant que la kaolinite s'organise en dickite, elle s'ordonne. Les désordres selon l'axe b, qui se sont produits pendant la sédimentation, s'effacent peu à peu. ECKHARDT (1964) a pu suivre cette remise en ordre sur les kaolinites associées aux séries houillères de la Ruhr. Au dessus de 200°C, il n'y a plus aucun désordre. Les particules de kaolinite voient se développer ensuite des groupements de feuillets deux à deux, comme dans la dickite, avec un angle de rotation de 120° d'un feuillet à l'autre. C'est à partir de ces germes que la dickite se développe, vers le bas et vers le haut, à l'intérieur du cristallite. Ces structures "maclées" dickite-kaolinite s'observent au microscope. La dickitisation peut être complète.

- Dans la métagenèse (fig. 96) : dickite et nacrite.

Cet horizon profond est celui des roches indurées et fracturées. Dans ces fractures circulent des fluides, qui assurent la recristallisation du matériel kaolinique en dickite monoclinique formant de larges cristaux pseudo-hexagonaux. C'est, par exemple, le stade manifestement atteint à Adamswiller. Lorsque la pression est très élevée, la nacrite se développe. Elle est monoclinique. Sa périodicité est de six feuillets. Elle se distingue de la dickite par ses raies de diffraction ou, plus simplement, par son signe optique négatif. On peut observer des cristaux maclés dickite-nacrite.

L'ensemble de ces observations résulte de déterminations très fines faites au microscope optique, par les rayons X, par microscopie et microdiffraction électronique. Le matériel d'étude est constitué par les sédiments paléozoïques des bassins de Karaganda et de Petchorsk. La néoformation de nacrite par diagenèse, dans des argiles liasiques, a été signalée en outre par IANOVICI et NEACSU (1968).

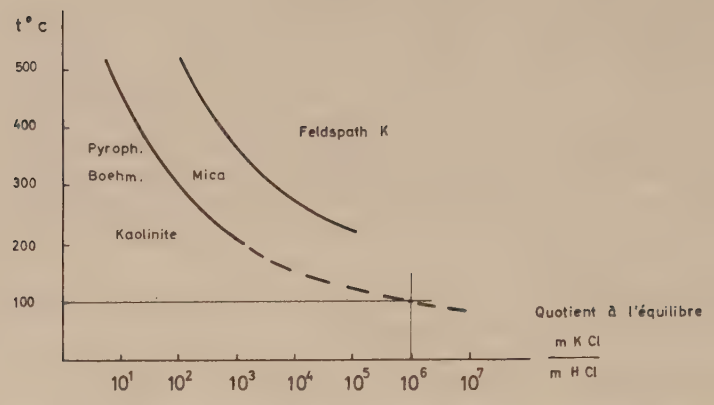


Fig. 95 - L'équilibre kaolinite-mica en fonction de la température et des concentrations. (d'après HEMLEY, 1959).

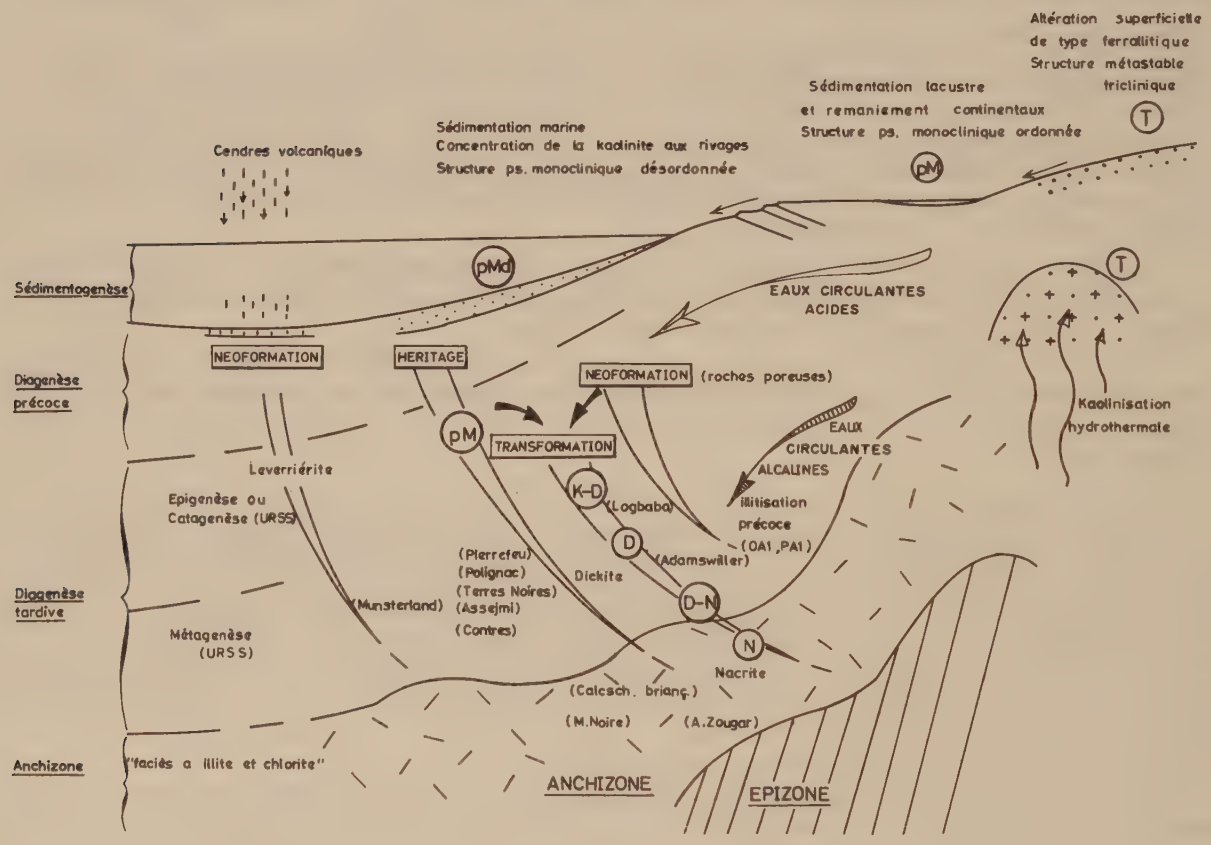


Fig. 96 - Le cycle géologique des minéraux du groupe de la kaolinite. Les noms des séries étudiées figurent entre parenthèse. L'halloysite, dont les conditions d'évolution en profondeur sont très mal connues, n'a pas été représentée.

T : structure triclinique
pM : structure pseudomonoclinique
pMd : structure pseudomonoclinique désordonnée.

3 - Données expérimentales sur la stabilité de la kaolinite

La stabilité de la kaolinite dans le système Al_2O_3 - SiO_2 - H_2O a fait l'objet de nombreuses recherches expérimentales depuis le travail fondamental de NOLL (1936). Les dernières en date sont celles de VELDE et KORNPROBST (1969). Elles nous apprennent que la transformation de kaolinite en pyrophyllite et en andalousite s'effectue à des températures voisines de 300°C et pratiquement indépendantes de la pression. Les auteurs écrivent :

"En somme, dans la plupart des circonstances géologiques, la kaolinite reste stable depuis les conditions de la sédimentation jusqu'à sa transformation en pyrophyllite ou en pyrophyllite + andalousite, selon que la réaction se produit en présence ou en l'absence de quartz".

C'est méconnaître l'ensemble des données sédimentologiques que je viens d'exposer dans ce chapitre, et qui me conduisent à écrire :

"En somme, dans la plupart des circonstances géologiques, la kaolinite devient instable bien avant que les conditions de température soient celles de sa transformation en pyrophyllite ou en andalousite".

La contradiction n'est qu'apparente entre ces deux propositions. En effet, le système Al_2O_3-SiO_2-H_2O n'est pratiquement jamais réalisé dans la diagenèse. Les sédiments évoluent avec leurs solutions interstitielles, solutions basiques, concentrées, riches en alcalins et en alcalino-terreux. La présence de potassium et de magnésium, en particulier, assure l'illitisation et la chloritisation du matériel argileux (LONG et NEGLIA, 1968), réalisant le faciès à illite et chlorite, caractéristique de l'anchizone (voir p. 271).

L'étude du système K_2O-Al_2O_3-SiO_2-H_2O donne une image plus réelle des transformations de la kaolinite. HEMLEY (1959) donne les courbes suivantes (fig. 95), établies pour une pression de 15 000 psi (environ 1060 kg/cm²).

L'eau de mer a un rapport mKCl/mHCl voisin de 10^6. En prolongeant la courbe d'équilibre de HEMLEY, on obtient un point correspondant à une température de 100° C. Or c'est à la température de 95°C que cet équilibre est atteint pour le pH de l'eau de mer selon RAYMAHASHAY (1968). L'accord est donc satisfaisant. L'eau de mer, à température ordinaire, assure la stabilité de la kaolinite. A partir de 100°C, en présence de potassium, l'illitisation peut s'effectuer.

Les expériences réalisées sur les argiles de Logbaba (p. 71) témoignent de cette instabilité de la kaolinite dans l'eau de mer, au dessus d'une certaine température. Il a fallu dépasser 200°C, il est vrai, ce qui peut s'expliquer par la métastabilité des structures et la lenteur des réactions.

En définitive, l'élévation de la concentration en potassium des solutions et l'élévation du pH abaissent fortement la température de l'équilibre kaolinite-mica. Celui-ci se réalise à des températures voisines de 100° C. Il n'est alors pas étonnant que les solutions salines de la diagenèse profonde, dont les températures atteignent et dépassent 200° C, assurent l'illitisation systématique de la kaolinite.

V - LE CYCLE DES MINERAUX DU GROUPE DE LA KAOLINITE

Les résultats qu'on vient d'exposer permettent de donner une représentation schématique du cycle parcouru par les minéraux du groupe de la kaolinite. La figure 96 résume l'essentiel. Elle appelle aussi quelques observations.

1 - L'hexacoordination de l'aluminium

La kaolinite offre à l'aluminium une structure, où celui-ci est exclusivement hexacoordonné, au sein d'octaèdres. La couche tétraédrique est exclusivement occupée par le silicium. Or la kaolinite est un minéral caractéristique des zones superficielles. Hexacoordination de l'aluminium et surface de l'écorce terrestre sont liées (LAPPARENT, 1941; MILLOT, 1949 p. 328, 1964 p. 448).

2 - Signification de la présence ou de l'absence de kaolinite dans les séries

a) La kaolinite, toujours détritique dans la sédimentation marine, constitue un indicateur paléogéographique (climats, rivages).

b) La kaolinite se montre très sensible au milieu géochimique. Ainsi, dans les roches à porosité suffisante, pourra-t-elle prendre naissance, ou se détruire, selon que les solutions parcourant les roches sont acides, ou alcalines. La kaolinite devient alors un indicateur de paléohydrologie profonde.

c) La kaolinite est donc un mauvais indicateur d'enfouissement, puisque les hasards de l'hydrologie profonde peuvent la faire disparaître précocement (Trias gréseux saharien), ou la maintenir profondément (Adamswiller).

3 - L'absence de kaolinite dans l'anchizone

Dans la zone profonde de la diagenèse, celle du "faciès à illite et chlorite" (l'anchizone), la kaolinite est généralement absente. L'alcalinité des solutions et la température (> 200°C) ont assuré son illitisation. Deux cas d'exception sont à noter :

- hydrothermalisme acide, engendrant dickite ou nacrite (Adamswiller),

- diagenèse régressive par des eaux vadoses acides, lors de la remontée des couches vers l'affleurement (épidiagenèse de FAIRBRIDGE, 1967).

CHAPITRE II

LES MONTMORILLONITES

Le groupe des montmorillonites, ou smectites, a fait l'objet du travail fondamental de ROSS et HENDRICKS (1945). De nombreux résultats ont été acquis, depuis lors, sur la cristallochimie et les méthodes d'identification. On en trouvera l'essentiel dans McEWAN (1951, 1961), GRIM (1953), GREENE-KELLY (1953, 1957) et ROSS (1960).

Les conditions de genèse et d'évolution des montmorillonites sont moins bien connues. Il est nécessaire de s'y arrêter un moment, avant d'entrer dans le détail des transformations diagénétiques.

I - GENESE DES MONTMORILLONITES DANS LE CYCLE GEOLOGIQUE

Les montmorillonites, silicates hydratés, sont caractéristiques des zones superficielles de l'écorce terrestre, au même titre que la kaolinite. Reprenant les conclusions de MILLOT (1964), on peut observer que les conditions de genèse des montmorillonites se réalisent en quatre milieux privilégiés.

1 - Dans les sols

a) Dans les sols tempérés lessivés, l'illite et la chlorite se dégradent par étapes, jusqu'à l'hydrolyse totale. Les montmorillonites sont une de ces étapes.

b) Dans la ferrallitisation, les montmorillonites apparaissent comme un stade transitoire dans la zone de départ.

c) Dans les sols tropicaux mal drainés, dont les vertisols sont l'exemple le plus important, les montmorillonites sont ferrifères (TRAUTH, PAQUET, LUCAS et MILLOT, 1967; PAQUET, 1969).

2 - Dans la sédimentation chimique basique

Les montmorillonites sont magnésiennes, soit seules, soit accompagnées d'attapulgite et de sépiolite. Le milieu est alcalin. Il peut être lacustre ou marin. Il engendre des carbonates, des phosphates, des roches siliceuses. Les séries sédimentaires crétacées et éocènes à phosphates d'Afrique occidentale, septentrionale, et du Moyen-Orient sont des exemples typiques de cette sédimentation.

3 - Dans les bentonites

Le terme de bentonite s'est élargi aux gisements d'argiles montmorillonitiques, de quelque origine qu'ils soient. Mais les bentonites proprement dites résultent de la transformation de cendres volcaniques in situ (ROSS et SHANNON, 1926). Les exemples en sont très nombreux. Il s'agit là d'une transformation diagénétique précoce en milieu alcalin. Elle est symétrique de celle qui conduit à la kaolinite en milieu acide.

4 - Dans les filons hydrothermaux

De très nombreux travaux font état de montmorillonites dans les filons hydrothermaux. Ce sont surtout des montmorillonites magnésiennes du groupe des saponites.

II - EVOLUTION DIAGENETIQUE DES MONTMORILLONITES

1 - Diagenèse précoce

Le milieu marin et le milieu diagénétique des sédiments frais sont faiblement alcalins. Ils seront favorables à la conservation, voire au développement des montmorillonites. Ils seront donc le lieu de néoformations et d'agradations.

a) Les néoformations

Les néoformations de montmorillonite en milieu marin viennent d'être évoquées à propos de la sédimentation chimique et des bentonites. Elles sont longuement argumentées par MILLOT (1964). J'y reviens ici, car la question se pose de savoir dans quelle mesure ces néoformations appartiennent au domaine de la diagenèse précoce. Si la diagenèse commence au moment où les particules détritiques sont immobilisées les unes par rapport aux autres, ainsi que la plupart des auteurs s'accordent à le dire, faut-il admettre que les néoformations des montmorillonites sont achevées à ce moment là ? Les données les plus récentes sur les montmorillonites dans la sédimentation actuelle (KAUTZ, 1967; MORGENSTEIN, 1967; BONATTI et JOENSUU, 1968; MOBERLY et coll., 1968) montrent que la néoformation des montmorillonites peut être précoce. L'évolution des verres volcaniques en milieu marin est également rapide (NORIN, 1953; MÜLLER, 1961; GRIM et VERNET, 1961). Il est donc permis de penser que les montmorillonites prennent naissance, en milieu marin, avant l'immobilisation des boues, mais il est certain que cette néoformation peut se poursuivre au sein du sédiment frais, par diagenèse précoce.

Le développement des montmorillonites dans un stade plus tardif de la diagenèse est une rareté. Signalons la formation de montmorillonite à partir d'halloysite dans le sidérolithique d'Aquitaine (KULBICKI 1953, 1954). Cette montmorillonitisation est attribuée à la circulation d'eaux siliceuses basiques, calciques et magnésiennes.

b) Les agradations

L'étude des minéraux argileux des zones d'estuaires et des sédiments marins récents a montré l'importance des phénomènes d'agradation. Les minéraux détritiques, issus des eaux douces continentales, rencontrent successivement le milieu marin et le milieu diagénétique, tous deux basiques et riches en certains ions, que ces minéraux ont perdus dans les manteaux d'altération. Par une sorte de "mémoire" (GRIM et BRADLEY, 1955), les minéraux argileux vont reprendre, par agradation, les ions qu'ils avaient perdu par dégradation.

Ces transformations ont fait l'objet d'un exposé détaillé (MILLOT, 1964, chap. X). La situation des montmorillonites est complexe. Elle est mêlée à toute une gamme de minéraux dégradés, édifices interstratifiés désordonnés, partiellement gonflants, dont les distances interfoliaires varient de 15 à 10 Å. Pour la commodité de l'exposé, je traiterai de ces agradations de montmorillonite en même temps que celle des interstratifiés gonflants, au chapitre suivant.

Ces agradations sont très difficiles à replacer dans le temps et dans l'espace, au même titre que les néoformations. Leur appartenance au domaine sédimentaire, ou diagénétique, doit être discutée dans chaque cas. Il faut tout de suite dire, cependant, que, d'une façon générale, elles débutent dans le bassin au cours de l'itinéraire suivi par les particules, et se poursuivent au sein du sédiment frais, par diagenèse.

2 - Les montmorillonites dans les sédiments anciens

J'ai signalé, au chapitre précédent, la rareté ou l'absence de la kaolinite dans les séries anciennes. Les travaux cités page 212 font état de la même régression pour les minéraux du groupe de la montmorillonite. La compilation d'un grand nombre de données a permis à WEAVER (1967) d'avoir une vue statistique de la répartition des minéraux argileux en fonction de l'âge stratigraphique (fig. 97).

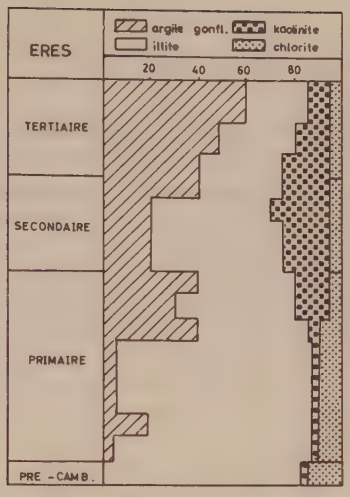


Fig. 97 - Répartition statistique des principaux minéraux argileux au cours des temps géologiques, d'après WEAVER (1967).

La figure 97 peut s'interpréter de deux façons. La première consiste à envisager que les conditions de genèse des montmorillonites se sont développées progressivement au cours de l'histoire stratigraphique. La seconde attribue à l'enfouissement la disparition de la montmorillonite dans les vieilles séries.

L'enfouissement, en effet, a été statistiquement d'autant plus important que la série est plus âgée. La première interprétation implique des changements paléoclimatiques de grande ampleur, et toujours dans le même sens. Tout porte à croire que de tels changements ne se sont pas produits. La seconde interprétation, en revanche, est étayée par les observations faites dans les forages profonds, en particulier dans ce mémoire.

L'absence des montmorillonites dans les vieilles séries est donc de règle. Pourtant des montmorillonites ont été identifiées dans des sédiments très recristallisés, voire métamorphisés (ce mémoire p. 199 ; YASHKIN, 1967; WILSON, BAIN et MITCHELL, 1968). Leur présence peut s'expliquer, soit par des conditions géochimiques locales très particulières (absence d'alcalins par exemple), soit par des phénomènes d'hydrothermalisme tardif. Ce sont des cas exceptionnels. Ils n'enlèvent rien au schéma général, selon lequel les montmorillonites deviennent instables au cours de l'enfouissement, ainsi qu'on va le voir maintenant.

3 - La diagenèse d'enfouissement

Parmi les nombreux forages étudiés ici, deux seulement présentent des montmorillonites : Logbaba et Pierrefeu. Il est vrai que l'ensemble de ces forages intéresse des séries essentiellement détritiques, et que les montmorillonites sont peu représentées dans ce genre de sédimentation.

A Logbaba, comme à Pierrefeu, les montmorillonites ne s'observent que dans le haut des séries. Leur absence plus bas peut être mise sur le compte de la diagenèse d'enfouissement dans la mesure où on peut affirmer qu'elles étaient présentes tout au long de la série avant son enfouissement. J'ai débattu cette question pour le Crétacé de Logbaba et pour l'Oligocène de Pierrefeu. J'ai conclu que la diagenèse d'enfouissement était vraisemblablement responsable de la disparition des montmorillonites.

Il ne s'agit pas à vrai dire d'une disparition, résultant d'une instabilité, mais d'une transformation rapide, quoique progressive, par déshydratation, adsorption d'ions alcalins et réarrangements au sein du réseau. Cette transformation conduit à des interstratifiés de type illite-montmorillonite (voir tableau VI p. 69). J'ai considéré que les montmorillonites étaient absentes lorsque le pic à 17 Å au glycol était lui-même absent.

La figure 98 permet de comparer les résultats présentés ici avec d'autres forages, pour lesquels on connaît le gradient géothermique.

On peut remarquer :

- que les températures de transformation des montmorillonites en interstratifiés illite-montmorillonite sont assez voisines (70 à 95°C),

- que la transformation survient avant que soit atteinte la limite établie expérimentalement par KHITAROV et PUGIN (1966) sur des argiles naturelles en présence de solutions potassiques.

Il est courant que les températures des réactions naturelles soient plus basses que celles des transformations expérimentales similaires. On a déjà observé ce fait à propos des montmorillonites de Logbaba, chauffées en présence d'eau de mer (p. 72). La raison la plus vraisemblable d'un tel décalage réside dans la vitesse des réactions. Si celle-ci est faible, les produits obtenus seront en quantité appréciable au bout de plusieurs millions d'années, tandis qu'ils seront pratiquement inexistants à la fin d'une expérience de l'ordre de quelques jours ou de quelques semaines. Ainsi des montmorillonites, apparaissant comme stables au laboratoire en présence de solutions potassiques, pourront-elles être transformées en interstratifiés illite-montmorillonite par une longue diagenèse, offrant pourtant les mêmes conditions thermodynamiques et géochimiques.

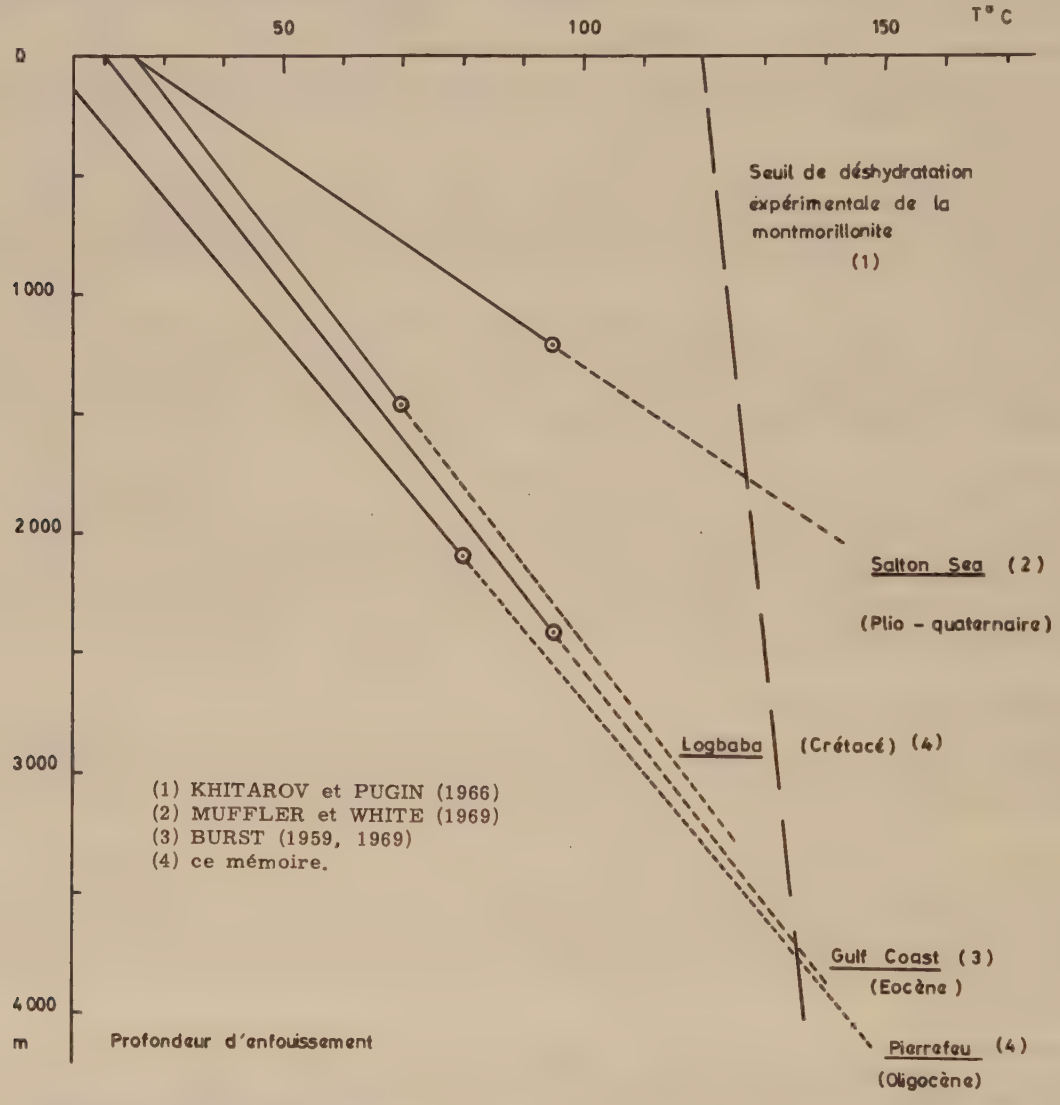


Fig. 98 - Instabilité de la montmorillonite au cours de l'enfouissement. Les droites représentent les degrés géothermiques.
En trait plein : présence de montmorillonite
En traits interrompus : absence de montmorillonite. Celles-ci ont été transformées en interstratifiés illite-montmorillonite par déshydratation et adsorption d'ions alcalins.

Le bassin récent du lac Salton, en Californie (fig. 98) (MUFFLER et WHITE, 1969), apporte des arguments décisifs en faveur du rôle de l'enfouissement. C'est un bassin plio-quaternaire. La sédimentation détritique, argilo-sableuse, s'y est développée sur 2500 m d'épaisseur. La minéralogie des sédiments n'a certainement pas varié au cours du plio-quaternaire, car les séries alentour livrées à l'érosion sont restées les mêmes. Le gradient géothermique est exceptionnellement élevé, les températures à 2 500 m de profondeur pouvant atteindre 360°C. On a donc là une maquette des transformations liées aux gradients physiques d'enfouissement. Le "faciès à illite et chlorite" est atteint à une température de 210°C. Au delà de 300°C se développent épidotes et feldspaths. On passe au "faciès des schistes verts" sans qu'apparaissent de zéolites.

La série pétrolifère éocène de la Gulf Coast (Texas, Louisiane) a fourni le premier exemple d'une diagenèse d'enfouissement typique des minéraux argileux (fig. 98) (BURST, 1959). Les montmorillonites disparaissent à une température moyenne de 95°C dans les nombreux forages étudiés. Elles passent à des interstratifiés illite-montmorillonite, dans lesquels le pourcentage d'interfoliaires gonflants, d'abord élevé, régresse régulièrement pour aboutir finalement à l'illite, selon le schéma déjà exposé.

BURST (1969) reprend l'étude des argiles dans les forages profonds du Tertiaire de la Gulf Coast. Il poursuit l'analyse de la déshydratation des argiles, le long de l'itinéraire montmorillonite → interstratifiés I-M → illite. Il distingue trois étapes.

1ère étape : expulsion de l'eau des pores. L'eau liée aux argiles (30 % environ) est en position interfoliaire, où elle forme une couche bimoléculaire. La profondeur atteinte est alors de 2 500 m environ.

2ème étape : expulsion de l'une des deux couches d'eau interfoliaire. Elle est progressive entre 2 500 et 4 500 m de profondeur.

3ème étape : expulsion de la dernière couche d'eau. Cette étape débute au-dessous de 4 500 m d'enfouissement. Elle est très lente et dépend beaucoup des conditions géologiques.

L'expulsion de l'eau se lit dans le pourcentage des interfoliaires gonflants. Ceux-ci sont déterminés sur les diffractogrammes. On observe toute une série d'interstratifiés illite-montmorillonite. La compaction et l'élévation de température sont les moteurs principaux de cette déshydratation, mais la composition ionique des solutions interstitielles, non envisagée par l'auteur, doit jouer un rôle primordial, puisque l'illitisation n'est pas seulement une déshydratation des interstratifiés I-M, mais encore et surtout une adsorption de cations alcalins.

D'autres observations sur la transformation des montmorillonites en profondeur peuvent être citées. Elles n'ont pas été reportées sur la figure 98, car les auteurs n'ont pas indiqué les gradients géothermiques subis par les séries. Il s'agit des travaux suivants.

LONG, NEGLIA et FAVRETTO (1964, 1966), LONG et NEGLIA (1968) font état de la régression des minéraux argileux gonflants dans les forages profonds de Libye, de Sicile et du bassin du Pô. La profondeur de gisement de la montmorillonite excède rarement 2 500 m.

De nombreux résultats sont repris par WEAVER (1967), qui présente une analyse des facteurs en jeu dans la déshydratation des montmorillonites.

TOWE et GRIM (1963) attribuent à une diagenèse l'absence de minéraux gonflants dans le Dévonien de l'état de New-York.

CARRIGY et MELLON (1964), étudiant le Crétacé et le Tertiaire de l'Alberta, constatent la présence de montmorillonite dans les "Plains", où la série n'a que 2 000 m d'épaisseur, et son absence dans les "Foothills", où l'enfouissement a atteint 8 000 m.

Enfin LOGVINENKO et KARPOVA (1968) situent au stade de "catagenèse avancée" la disparition de la montmorillonite.

III - TRANSFORMATIONS EXPERIMENTALES DES MONTMORILLONITES

1 - A température et pression ordinaires

CAILLÈRE, HÉNIN et coll. (1947, 1948, 1949), CAILLÈRE (1949), BESSON, CAILLÈRE et HÉNIN (1966) obtiennent, à partir de montmorillonites et de solutions magnésiennes ou potassiques,

des minéraux au comportement de chlorite ou de mica. La fixation de potassium nécessite une ébullition de 8 h dans une solution normale de KOH.

WHITEHOUSE et McCARTER (1958), faisant agir de l'eau de mer artificielle sur de la montmorillonite, font apparaître de la chlorite, de l'illite et des interstratifiés divers. Les résultats de SLAUGHTER et MILNE (1960) confirment la transformation de montmorillonite en chlorite par fixation de magnésium entre les feuillets.

L'ensemble de ces résultats montre que des modifications très importantes peuvent intervenir dans le matériel montmorillonitique au cours de la diagenèse précoce, à température et pression très modérées. Selon le milieu géochimique réalisé, la montmorillonite restera stable, s'agradera en chlorite, ou se dégradera en kaolinite. L'illitisation, plus difficile, se réalisera généralement au stade ultérieur, celui de la diagenèse profonde, à température et pression plus élevées.

2 - A température et pression élevées

Le chauffage des montmorillonites donne d'utiles indications sur leur constitution chimique par l'étude des courbes d'A.T.D. et l'analyse des produits formés (LUCAS et TRAUTH, 1965). Mais ces données sont inutilisables pour comprendre les réactions des montmorillonites dans la diagenèse, où l'eau est toujours présente et la pression élevée. Quatre séries d'expériences, réalisées en présence d'eau, peuvent être mentionnées.

a) Transformation des montmorillonites dans des solutions magnésiennes entre 300°C à 85 bars et 600°C à 1 000 bars (SABATIER, 1965)

A des températures inférieures à 350°C, c'est la chlorite qui apparaît. Au-dessus de cette température, il se forme de la corrensite et du talc, ou bien de la chlorite, selon que la quantité de magnésium est inférieure, ou supérieure, à 0,4 g de MgO pour 1 g de montmorillonite sèche. L'introduction de $CaCO_3$ et de $MgCO_3$ en proportion convenable permet de réaliser, non plus des phyllosilicates, mais un mélange de plagioclase et de pyroxène. Ces expériences reproduisent la formation naturelle de corrensite et de chlorite à partir de feuillets T.O.T. dégradés (LUCAS, 1962; LUCAS et ATAMAN, 1968), ainsi que celle de talc dans les séries salifères (FÜCHTBAUER et GOLDSCHMIDT, 1959). Il faut observer, une fois encore, que les températures expérimentales sont très supérieures aux températures naturelles, qui n'ont jamais dû dépasser 150°C.

b) Transformation d'argiles montmorillonitiques dans l'eau de mer entre 200°C à 15 bars et 400°C à 325 bars (ce mémoire p. 71)

J'ai montré comment les expériences réalisées par G. SABATIER sur les argiles de Logbaba avaient permis la fermeture partielle des feuillets de montmorillonite à la température de 400°C. J'ai dit la raison probable pour laquelle cette température était plus élevée que celle mesurée dans le milieu naturel : une vitesse de réaction très faible. Il est une autre raison, à laquelle les observations récentes de LONG et NEGLIA (1968) donnent beaucoup de poids : la teneur en potassium des solutions interstitielles. Cette teneur peut être nettement plus élevée que celle du milieu marin et, dans ce cas, l'illitisation des feuillets T.O.T. s'effectue beaucoup plus rapidement.

c) Déshydratation des montmorillonites par chauffage sous pression (KHITAROV et PUGIN, 1966)

Les expériences sont faites sur des marnes et des argiles naturelles. Le seuil de déshydratation se situe entre 130 et 150°C à la pression atmosphérique. Il s'élève jusqu'à 260°C pour une pression de 15 000 atm. Le seuil de déshydratation est une droite dans un système P-T (fig. 98). La montmorillonite n'est pas détruite dans ces expériences. Elle a seulement perdu son eau interfoliaire, et la distance entre les feuillets est tombée à 9,57 Å.

En présence d'une solution de KCl à 10 %, l'illitisation survient dès que le seuil de déshydratation a été atteint, mais pas avant. Pour une pression de 5 000 atm, il se fait à 170°C une illite, dont l'espacement basal est de 10,88 Å. Celui-ci descend à 10,28 Å à 200°C et au delà.

Ces résultats sont en assez bon accord avec les données de la géologie, en particulier celles des auteurs russes (KOSSOVSKAYA et SHUTOV, 1963). Toutefois, les chiffres dont je dispose ici

montrent que la déshydratation des montmorillonites, aussi bien que leur illitisation, débutent à des températures inférieures à celles qu'ont déterminées KHITAROV et PUGIN. Ainsi, à Logbaba, la déshydratation est pratiquement achevée à 75°C (au lieu de 130), et l'illitisation devient importante dès 150°C (au lieu de 170).

d) Autres travaux

Les conditions d'équilibre thermodynamique des montmorillonites ont fait l'objet de nombreuses recherches (ROY et ROY, 1955; AMES et SAND, 1958; KOIZUMI et ROY, 1959; SZADECZKY-KARDOSS et coll., 1968). Elles indiquent toutes que les montmorillonites sont stables jusqu'à des températures et des pressions largement supérieures à celles de la diagenèse. Or la transformation des montmorillonites dans la diagenèse est générale, ainsi qu'on vient de le montrer. Elle est donc commandée par d'autres facteurs. Ce sont la compaction d'une part, provoquant une expulsion de l'eau interfoliaire, et les solutions interstitielles, d'autre part, apportant des ions alcalins, qui viennent fermer les feuillets.

IV - CONCLUSION

1 - L'évolution générale des montmorillonites

La revue qu'on vient de faire permet d'avoir une vue d'ensemble sur les conditions d'évolution des montmorillonites. La figure 99 en donne une représentation schématique, où l'on retrouvera les principaux points qui ont été développés dans ce chapitre.

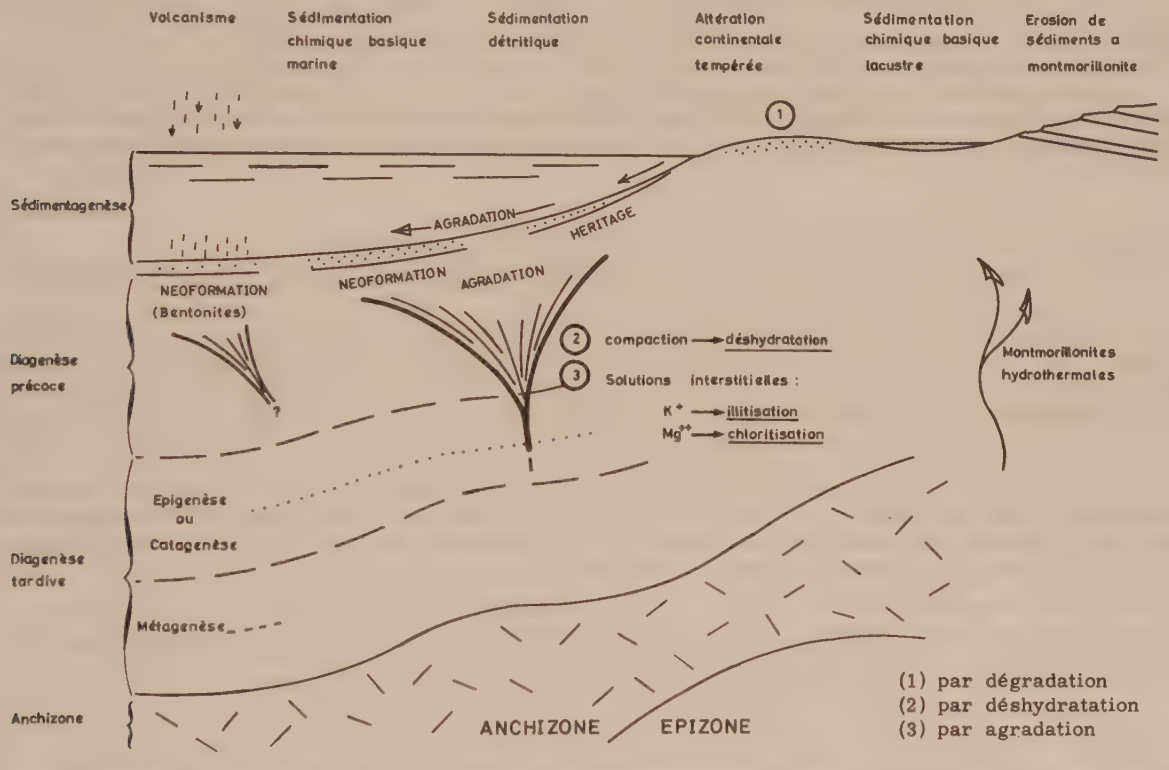


Fig. 99 - Evolution géologique des minéraux du groupe de la montmorillonite. Triple instabilité des montmorillonites par dégradation, deshydratation ou agradation.

Les montmorillonites, minéraux caractéristiques de l'hydrosphère, prennent naissance dans des conditions très variées, par néoformation dans les filons hydrothermaux, par néoformation en milieu marin, par dégradation des silicates dans les manteaux d'altération, par héritage en divers milieux. Quelles que soient leurs conditions de genèse, les montmorillonites présentent dans

l'hydrosphère une "double instabilité" (MILLOT, 1964, p. 356) : offertes aux solutions diluées dans les altérations et les sols à caractère lessivant, elles peuvent se dégrader, puis disparaître par hydrolyse ; au contraire, entraînées dans des milieux confinés, elles peuvent s'agrader et capter les ions qu'elles avaient perdus.

L'étude de la diagenèse enseigne qu'il existe pour les montmorillonites un troisième facteur d'instabilité, intervenant au cours de l'enfouissement. La diagenèse d'enfouissement réalise certes un milieu confiné, où se feront des agradations. Mais celles-ci seront favrorisées, en outre, par la compaction, qui chasse l'eau d'entre les feuillets. Confinement et compaction sont des facteurs essentiels de l'évolution diagénétique. On s'y arrêtera un moment.

2 - L'instabilité des montmorillonites dans la diagenèse

a) La température ne joue pas un rôle déterminant. Dans des conditions d'hydratation suffisantes, la stabilité de la montmorillonite est assurée jusqu'à des températures dépassant très largement le domaine de la diagenèse.

b) La pression intervient au premier chef, dans la mesure où elle assure une compaction du sédiment. La compaction provoque la déshydratation des argiles montmorillonitiques. La déshydratation peut s'étudier à différentes échelles. A l'échelle des particules, l'orientation de celles-ci et le mouvement de l'eau ont fait l'objet de travaux très poussés : une revue en est donnée par MEADE (1964). A l'échelle du réseau cristallin, les mécanismes ont été analysés par BURST (1969), ainsi qu'on l'a vu. L'écrasement des feuillets par déshydratation est réversible, tant que des cations fixés, les alcalins en particulier, n'auront pas verrouillé ces feuillets.

c) La chimie des solutions interstitielles représente le second facteur important de transformation des montmorillonites. L'adsorption de Mg^{2+}, Na^{+} et K^{+} entre les feuillets engendre des interstratifiés irréguliers de type chlorite-montmorillonite. La présence constante de ces trois cations dans les solutions interstitielles de la diagenèse assure une transformation pratiquement générale. On a vu comment des expériences de laboratoire avaient permis de réaliser cette transformation. On étudiera au chapitre suivant les différentes étapes naturelles de cette agradation des montmorillonites vers la chlorite ou l'illite par l'intermédiaire de minéraux interstratifiés (voir fig. 100).

3 - Contribution des montmorillonites à la zonéographie de la diagenèse

Il ne semble pas que la présence ou l'absence de montmorillonite puisse être un indicateur valable de la température atteinte par une série. En revanche, le rôle primordial de la compaction dans la déshydratation des montmorillonites en fait un repère d'enfouissement. Les auteurs soviétiques, qui disposent de nombreuses données sur l'ensemble de la plate-forme russe, situent la disparition des montmorillonites à la base de ce qu'ils nomment la zone d'épigenèse (ou catagenèse) (LOGVINENKO et KARPOVA, 1968). Les forages de Logbaba et de Pierrefeu confirment cette disposition. Je rappelle que la kaolinite est généralement encore stable dans cette zone.

Un travail récent (LONG et NEGLIA, 1968) a montré l'importance de la teneur en potassium des solutions interstitielles pour l'illitisation des feuillets montmorillonitiques. Il s'ensuit que la présence ou l'absence de montmorillonite pourra être également un indicateur de la chimie des eaux profondes, dont la composition pourra être estimée.

Enfin, la présence locale de montmorillonites dans des zones profondes de la diagenèse, dans l'anchizone, ou dans l'épizone devra être interprétée comme une manifestation de type hydrothermal, sans rapport avec l'évolution générale de la série encaissante.

CHAPITRE III

LES MINÉRAUX ARGILEUX INTERSTRATIFIÉS

L'existence de tels minéraux a été mise en évidence par GRUNER (1934), puis par HENDRICKS et JEFFERSON (1938), à propos de la structure des hydrobiotites et vermiculites. A la suite de cette découverte, de nombreux travaux ont été faits, tant dans le domaine minéralogique, celui de l'étude théorique de l'interstratification et de la détermination pratique des minéraux, que dans le domaine géologique, où l'importance des interstratifiés s'est très vite révélée.

L'inventaire des connaissances sur la minéralogie des interstratifiés sortirait du cadre de ce mémoire. Le lecteur pourra se reporter aux mises au point présentées par BRINDLEY (1951), BROWN et McEWAN (1951), McEWAN, RUIZ-AMIL et BROWN (1961), LUCAS (1962), MILLOT (1964), KOSSOVSKAYA (1966), HOWER et MOWATT (1966), et ZEN (1967).

Je me contenterai dans ce chapitre d'examiner le sort des minéraux argileux interstratifiés dans l'évolution sédimentaire et diagénétique, en confrontant mes observations avec celles dont on dispose dans la littérature. Des subdivisions ont été faites pour la commodité de l'exposé, mais elles ne correspondent nullement à un ordre logique dans le cycle des transformations sédimentaires. Une vue d'ensemble sur l'interstratification dans la diagenèse profonde sera donnée à la fin du chapitre.

I - L'ORIGINE DES MINERAUX ARGILEUX INTERSTRATIFIES DETRITIQUES DANS LES SEDIMENTS

L'utilisation des spectrogoniomètres enregistreurs, en facilitant la lecture des diffractogrammes, a révélé que les minéraux argileux interstratifiés étaient courants dans les sédiments. WEAVER (1956) constate que 70 % des échantillons qu'il a étudiés renferment des interstratifiés. Il s'agit de 6 000 roches argileuses de tous âges, depuis le Cambrien jusqu'aux sédiments récents. KULBICKI et MILLOT (1959) indiquent 90 % pour 3 000 échantillons du Secondaire et du Tertiaire d'Aquitaine. Ces chiffres se sont confirmés depuis lors. En outre, les techniques d'identification des édifices interstratifiés se sont perfectionnées, et des relations apparaissent déjà entre les types structuraux et les milieux géologiques. Avant d'étudier l'empreinte des milieux sédimentaires et diagénétiques, il importe de connaître la nature des interstratifiés qui prennent naissance dans les manteaux d'altération, et que l'érosion va entraîner vers les bassins de sédimentation.

1 - Les matériaux d'origine

L'étude de l'altération des micas dans les sols a répandu l'idée que les interstratifiés livrés à la sédimentation ont pour origine les muscovites et les biotites des roches cristallines et cristallophylliennes. C'est une vue très partielle. Si, en effet, on considère l'ensemble des terrains livrés à l'altération et à l'érosion sur les continents, on note la présence de matériaux d'épandage plio-quaternaires, de toutes sortes de séries sédimentaires argileuses (argiles, schistes, marnes, flyschs, molasses, culm, séries pyroclastiques etc...), de la masse imposante des séricitoschistes et chloritoschistes des épizones, et enfin seulement des roches granitiques et gneissiques. Celles-ci, d'ailleurs, présentent à l'affleurement des sércites et chlorites de rétromorphose, nées dans la zone de diagenèse régressive (voir fig. 1). L'altération et la fragmentation des micas de haute température représente donc, pour le géologue, une part très minime dans l'élaboration des minéraux argileux livrés aux bassins sédimentaires.

Mais avant d'être entraînés vers les bassins, ces minéraux argileux de toutes sortes vont êtres soumis aux altérations superficielles.

2 - Les mécanismes d'altération

- L'altération est discrète. La charge des feuillets est à peine modifiée. Les ions interfoliaires sont partiellement évacués. Ce qu'une altération discrète peut faire, une diagenèse discrète peut également le faire en sens inverse. Les minéraux argileux dans les bassins seront approximativement les mêmes que ceux que l'érosion a arrachés du continent à l'amont.

- L'altération est intense. Les ions sont lessivés, non seulement entre les feuillets, mais au sein des feuillets eux-mêmes. Les charges diminuent considérablement. Il se réalise alors des interstratifiés I-M en quantités considérables. C'est le cas général, car, même si les conditions climatiques ne sont pas excessivement dégradantes, les minéraux ont une longue histoire superficielle, qui peut les faire évoluer peu à peu vers la montmorillonite. Il faut concevoir que l'altération dépasse le cadre du profil pédologique. Elle le précède, par l'action d'une diagenèse régressive avant l'affleurement ; elle le suit également au cours de la chaîne complexe qui va d'un sol à l'autre, d'une terrasse alluviale à un cône deltaïque, d'une reprise d'érosion à un remaniement côtier, avant l'immobilisation finale sur un fond océanique.

L'évocation de l'origine des interstratifiés est utile. La diagenèse profonde va nous montrer une régularisation et une fermeture de ces minéraux. Il est logiquement nécessaire que les parties superficielles du cycle géologique réalisent des transformations symétriques de celles des parties profondes, puisqu'il existe un équilibre apparent à l'échelle des temps géologiques. La symétrie de ces transformations, sur laquelle on s'arrêtera dans le dernier chapitre de ce mémoire, a déjà été exposée par MILLOT (MILLOT, 1964; MILLOT, LUCAS et PAQUET, 1966). Les thèses de TARDY (1969) et PAQUET (1969) apportent des précisions sur les transformations dégradantes de la surface. Les faits que je présente dans ce mémoire montrent la réalité des transformations agradantes, dans les séries marines, pendant la sédimentation et la diagenèse.

C'est cette action du milieu marin d'abord, puis du milieu diagénétique, qu'on examinera maintenant. Il faut rappeler, une fois encore, qu'il est très difficile d'assigner une place exacte aux transformations subies par un sédiment ancien, et que les limites tranchées, proposées ici pour la commodité de l'exposé, entre sédimentation, diagenèse précoce et diagenèse tardive sont plus formelles que réelles.

II - L'AGRADATION DES INTERSTRATIFIES DANS LA SEDIMENTATION ET LA DIAGENESE PRECOCE

1 - Données sur les sédiments récents

Les transformations des minéraux argileux dans les sédiments récents ont été maintes fois décrites, depuis qu'elles furent mises en évidence (DIETZ, 1941; GRIM, DIETZ et BRADLEY, 1949). J'ai expliqué, dans la première partie de ce mémoire, comment ces transformations au cours du transport des minéraux détritiques ont été nommées par erreur "diagenèse". Ces transformations n'ont rien à voir avec la diagenèse, puisqu'elles sont antérieures au dépôt et à l'enfouissement. Ce sont des transformations positives au cours de la sédimentogenèse.

Ces transformations appartiennent, sans ambiguité, au domaine sédimentaire et non pas au domaine diagénétique. Leur analyse sort donc du cadre de ce mémoire, et je renvoie le lecteur aux descriptions qu'en a données MILLOT (1964, p. 368 et suiv.). Il s'agit essentiellement de la formation de feuillets d'illite et de chlorite à partir d'édifices interstratifiés désordonnés. Le phénomène majeur est l'adsorption des ions K^+ et Mg^{2+} dans les espaces interfoliaires. Les travaux les plus récents (GRIFFIN et PARROT, 1964; MONACO, 1965; LAFOND, 1967; KNEBEL, KELLY et WHETTEN, 1968; KUNZE, KNOWLES et KITANO, 1968; SIEGEL, PIERCE, URIEN et STONES, 1968) n'ont pas apporté de modification à ce schéma. Mais ils ont montré que ces agradations par le milieu marin, "marine diagenesis" de GRIM (1953), n'ont peut-être pas une importance aussi grande que celle qu'on leur avait attribuée il y a quelques années.

2 - Le cas des métabentonites ou bentonites potassiques

Il s'agit de bentonites, c'est-à-dire d'argiles montmorillonitiques issues de la dévitrification de produits volcaniques, et que des solutions potassiques, généralement marines, ont partiellement illitisées. Elles sont connues dans l'Ordovicien de Suède (BYSTRÖM, 1954, 1957), dans le Silurien d'Angleterre (MAC EWAN, 1956), dans le Carbonifère de Tchécoslovaquie (JANSA et DURCAKOVA, 1965), dans l'Ordovicien, le Silurien et le Dévonien en diverses régions de l'est des Etats-Unis (WEAVER, 1953; HUFF, 1963; LOUNSBURY et MELHORN, 1964; MOSSLER et HAYES, 1966), ainsi que dans le Pliocène du Colorado (SCHLOCKER et VAN HORN, 1958).

Le minéral dominant dans ces métabentonites est un interstratifié irrégulier illite-montmorillonite, où le rapport I/M varie de 4/1 à 3/2, avec une moyenne de 3/1. Le pic de base est bien marqué, souvent très effilé, situé en moyenne à 12 Å pour l'échantillon naturel, passant à 11 par saturation au potassium et à 13 après glycolage. L'analyse chimique révèle une teneur en potassium élevée, liée au pourcentage d'interfoliaires gonflants et à la capacité d'échange cationique. C'est pourquoi ces argiles ont été nommées "K-bentonites", ou bentonites potassiques, pour les distinguer des bentonites ordinaires, dont la teneur en potassium est très faible (GRIM, 1953).

Les auteurs cités plus haut s'accordent sur l'interprétation sédimentologique de ces formations. Elles auraient été d'abord des bentonites ordinaires, où le minéral dominant est la montmorillonite. Par la suite, des solutions potassiques auraient provoqué une illitisation partielle de ces argiles. Sur l'origine de ces solutions, on sait peu de choses. Ce peut être le milieu marin, assez riche en potassium pour illitiser des argiles bentonitiques remontées ; ce peut être aussi le milieu diagénétique, où les solutions interstitielles sont généralement plus concentrées que dans l'eau de mer. Les deux possibilités sont évoquées par LOUNSBURY et MELHORN (1964), mais il semble que le rôle de la diagenèse ait été généralement sous-estimé.

Le rôle de la diagenèse dans l'illitisation des bentonites me paraît pourtant ressortir des observations suivantes.

1) Dans un cas particulier, JANSA et DURCAKOVA (1965) ont prouvé que l'illitisation de bentonites carbonifères s'était effectuée sous un enfouissement de 4 à 5 000 m.

2) Presque toutes les bentonites potassiques sont paléozoïques, alors qu'il existe des bentonites de tous âges. Or il est certain que, pour une formation, les chances de rencontrer en profondeur des solutions potassiques augmentent avec le temps. De plus, l'élévation de la température et de la pression, en profondeur, favorisent la réaction d'adsorption du potassium et le tassement des montmorillonites.

3) Les interstratifiés illite-montmorillonite de ces bentonites sont très proches de ceux que j'ai identifiés dans la diagenèse d'enfouissement (voir III° partie de ce mémoire). De plus, la tendance à la régularité, manifeste dans la diagenèse profonde, a été décelée également dans une métabentonite (MAC EWAN, 1956). Elle se traduit par le fait que deux feuillets montmorillonitiques ne sont jamais contigus.

4) L'illitisation des métabentonites n'est que partielle, non pas parce que les conditions de milieu sont faiblement illitisantes, mais parce que les feuillets T.O.T. ont une charge trop faible. MOSSLER et HAYES (1966) décrivent des bentonites potassiques, interstratifiées dans des shales et calcaires ordoviciens. Les illites des bentonites sont de type 1 Md mal cristallisé, alors que celles des shales et calcaires sont de type 2M et bien cristallisées ; les conditions d'une franche illitisation ont donc été réalisées pour l'ensemble de la formation, mais les bentonites s'y sont montrées résistantes.

En définitive :

- Il est certain que les bentonites potassiques résultent de la transformation secondaire de bentonites ordinaires par des solutions potassiques, soit dans les bassins sédimentaires par transport et remaniement, soit, plus généralement, par percolation de solutions interstitielles potassiques au cours de la diagenèse d'enfouissement.

- Cette transformation peut être amorcée dans les bassins sédimentaires marins au cours des transports et des remaniements précédant le dépôt.

- Elle peut se poursuivre et s'achever après enfouissement, au cours d'une diagenèse précoce ou tardive.

Les bentonites potassiques nous offrent donc un exemple de transformations, dont la situation, dans le temps et dans l'espace, est particulièrement difficile à préciser. Un autre exemple est celui du développement des corrensites et des chlorites d'agradation.

3 - La corrensite

La corrensite offre un exemple de structure interstratifiée régulière acquise au cours du phénomène sédimentaire. LUCAS (1962) a fait le point sur cette question, ainsi que MILLOT (1964). La corrensite, interstratifié régulier chlorite-montmorillonite, est surtout connue dans les faciès sursalés du Permo-trias. Elle est généralement interprétée comme une étape intermédiaire dans l'évolution d'illites dégradées vers la chlorite par fixation de magnésium. Le magnésium est fourni par le milieu de sédimentation dont le caractère est, en l'occurence, confiné.

LUCAS et ATAMAN (1968) ont suggéré que cette évolution s'était effectuée dans le Trias du Jura au cours du transport des particules dans le milieu, avant leur dépôt ou leur enfouissement, c'est-à-dire avant la diagenèse. Or les arguments géochimiques qu'ils proposent n'interdisent pas de penser qu'elle s'est poursuivie pendant la diagenèse, car le milieu de diagenèse hérite les caractères géochimiques du milieu de sédimentation. Il est certain qu'une partie des transformations minéralogiques a pu s'effectuer avant le dépôt. Mais il est probable qu'elles se sont poursuivies après enfouissement.

Le milieu de la diagenèse précoce est riche en magnésium, et POWERS (1959) a montré que l'adsorption de Mg^{2+} par les minéraux argileux se faisait préférentiellement jusqu'à une certaine profondeur, nommée par lui "equivalence level", où l'adsorption de K^{+} prenait le pas.

L'un des arguments majeurs de LUCAS et ATAMAN est que l'agradation est plus poussée en haut de la série qu'à la base, ce qui indiquerait que le rôle de l'enfouissement est nul. Or ce rôle n'est pas nul. L'ensemble du Trias du Jura a été enfoui à une profondeur de l'ordre de 2 000 m et l'enfouissement a exercé ses effets d'une façon sensiblement égale sur toutes les parties de la série. Mais le confinement progressif du bassin triasique s'est traduit, à l'époque du dépôt, par le piégeage de solutions interstitielles de plus en plus concentrées. Ces solutions ont ensuite induit des agradations d'autant plus poussées que le milieu était plus riche en magnésium. L'élévation de température consécutive à l'enfouissement n'a pu que favoriser la formation de corrensite, puisque WYART et SABATIER (1966) en ont fait la synthèse à partir de montmorillonite et d'une solution magnésienne entre 300 et 600°C.

Il est donc vraisemblable que les agradations des faciès sursalés, conduisant à des interstratifiés de type corrensite, se sont amorcées dans le milieu de sédimentation, et poursuivies au cours de la diagenèse précoce. Celle-ci hérite les caractères géochimiques du milieu, et varie au cours du temps, tout comme le milieu lui-même. Le transport des particules dans le milieu de sédimentation peut durer quelques années, compte tenu des dépôts provisoires et des remaniements. L'immobilisation dans la zone de diagenèse précoce, au sein d'une boue, qui possède les mêmes éléments chimiques que le milieu sédimentaire, dure des millions d'années. Cette disproportion des durées est encore une raison pour que les agradations ne se soient pas achevées au cours de la phase fugitive du transport.

Avant de quitter la corrensite, il faut signaler son isotype dioctaédrique alumineux. Les chlorites alumineuses ont été nommées sudoïtes (voir p. 256). L'interstratification régulière de sudoïte et de montmorillonite a été nommée tosudite (SUDO et KODAMA, 1957). La tosudite a été identifiée dans la zone de diagenèse à plusieurs reprises (DRITS et SHUTOV, 1966; DRITS et KOSSOVSKAYA, 1965; FRANK-KAMENETSKY, LOGVINENKO et DRITS, 1965; KULKE, 1969), ainsi que dans l'altération hydrothermale (HECKROODT et ROERING, 1965).

III - LES INTERSTRATIFIES DANS LA DIAGENESE PROFONDE

Les résultats exposés dans la III° partie de ce mémoire ont fait apparaître les interstratifiés comme un des constituants essentiels des minéraux argileux dans la diagenèse. Ils forment deux groupes d'importance très inégale.

1 - Les interstratifiés chlorite-vermiculite

Il s'agit de minéraux voisins de la chlorite, insensibles à l'éthylène-glycol, mais qui subissent un tassement partiel au chauffage. Ils constituent une phase minéralogique distincte dans les forages de Logbaba (fig. 10, 13 et 14). Leur instabilité au chauffage décroît au cours de l'enfouissement, et ils passent peu à peu à une véritable chlorite.

Dans la plupart des forages étudiés les chlorites présentent un pic à 14 Å dont la stabilité au chauffage est très médiocre dans le haut des séries. Il ne se forme cependant pas un palier entre 10 et 14 après chauffage, mais un simple écrasement du pic. Le terme "chlorite-vermiculite" ne se justifie pas alors, et j'ai décrit ces minéraux comme des "chlorites instables au chauffage". En profondeur, la stabilité augmente et on passe à des chlorites typiques, dont les pics d'ordre impair sont accentués, au contraire, par le traitement thermique.

L'interstratification chlorite-vermiculite représente une étape dans l'agradation de feuillets T.O.T. dégradés, de type vermiculitique, vers la chlorite. SHOVER (1964) montre le passage continu de la vermiculite à la chlorite par fixation de magnésium dans les schistes du Pennsylvanien. L'interstratification vermiculite-chlorite lui permet de mesurer le degré de recristallisation diagénétique.

Je n'ai pas observé d'interstratifié régulier, témoignant d'un état d'équilibre, analogue à celui décrit par DRITS et KOSSOVSKAYA (1965) dans le Crétacé de Sibérie, où il appartient à la zone de diagenèse. Ces auteurs lui ont donné le nom de "sangarite".

2 - Les interstratifiés illite-montmorillonite

J'ai montré comment les mécanismes de l'altération superficielle engendraient ces interstratifiés, et comment les milieux de sédimentation pouvaient les faire évoluer vers l'illite ou vers la chlorite par fixation de potassium ou de magnésium.

La diagenèse d'enfouissement va donc s'exercer sur une population de minéraux interstratifiés, où toutes les proportions de montmorillonite et d'illite sont possibles. Elle va réaliser deux types de transformations, que j'exposerai l'un après l'autre.

A - Illitisation progressive par diminution du taux d'interfoliaires gonflants

La plupart des forages étudiés ici présentent une fraction importante d'interstratifiés illite-montmorillonite. Des exemples de diffractogrammes ont été donnés (fig. 13, 14, 55, 61). J'ai montré en maintes occasions comment la capacité de gonflement de ces interstratifiés I-M diminuait avec l'enfouissement, et comment on passait de façon continue du pôle montmorillonite au pôle illite. Lorsque la capacité de gonflement devient très faible, le terme d'"illite ouverte" vient remplacer avantageusement celui d'interstratifié illite-montmorillonite. La mesure de la "cristallinité" de l'illite devient alors un moyen simple de chiffrer la disparition progressive des interfoliaires gonflants. Il en sera question au chapitre suivant.

La variation progressive des interstratifiés illite-montmorillonite s'observe bien dans les forages des "terres noires" (fig. 68 à 75), dans le forage d'Assejmi (fig. 44) et surtout dans les forages de Logbaba (fig. 10, 13, 14, 15, 18 et 19). A Logbaba, cinq catégories d'interstratifiés ont pu être distinguées d'après la morphologie des diffractogrammes (tableau VI). Cette évolution a pu être mise en rapport avec la capacité d'échange cationique et avec la teneur en potassium de l'argile.

Ces résultats apportent de nombreuses preuves chiffrées d'une évolution, sur laquelle tous les géologues des argiles s'accordent, mais que bien peu de faits n'étaient venus confirmer encore. J'exposerai maintenant les données dont on dispose en dehors de celles qui sont présentées dans ce mémoire.

L'analyse des minéraux argileux dans les sédiments anciens a permis de constater assez tôt (GRIM 1953) que les interstratifiés désordonnés gonflants régressent vers la base de la colonne stratigraphique. Ce n'est pas tant l'âge du sédiment qui est en jeu, encore que certaines réactions puissent être suffisamment lentes pour que le temps intervienne. C'est, avec l'âge, la probabilité croissante pour que le sédiment ait subi un enfouissement important au cours de son histoire.

Les données des forages profonds ont apporté une confirmation de la transformation des interstratifiés I-M en profondeur, et permis de cerner les mécanismes de cette évolution. Je citerai les principaux travaux par ordre chronologique.

POWERS (1959) étudie l'adsorption des ions Mg^{2+} et K^{+} par les minéraux argileux détritiques des sédiments récents. Il compare ces résultats expérimentaux avec les données de nombreux forages profonds. Il constate qu'à des profondeurs moyennes (2 à 4 000 m) les interstratifiés de type I-M prennent un grand développement, puis qu'à des profondeurs plus importantes (4 000 m) ils passent à l'illite, tandis que la chlorite voit ses pics de diffraction s'affermir.

BURST (1959) analyse les minéraux argileux des forages ayant traversé l'Eocène de la Gulf Coast (Texas et Louisiane). La montmorillonite régresse au dessous de 1 000 m. Entre 1 000 et 4 500 m dominent des interstratifiés gonflants de type I-M, dont la capacité de gonflement diminue progressivement. Au-dessous de 4 500 m, la capacité de gonflement des minéraux argileux est pratiquement nulle, et on n'observe plus qu'illite et chlorite.

FÜCHTBAUER et GOLDSCHMIDT (1963) font état de forages ayant traversé le Mésozoïque d'Allemagne. L'enfouissement favorise le développement d'illite et de chlorite au détriment de la montmorillonite et de la kaolinite. Ces transformations sont mises en relation avec la migration du pétrole. Le problème de l'interstratification illite-montmorillonite n'est pas abordé.

SCHERP (1963) présente l'étude des argiles dans le forage de Münsterland 1, qui a traversé près de 4 000 m de Carbonifère en Allemagne du Nord. La profondeur maximale atteinte est 5 956 m. Montmorillonite et interstratifié I-M sont absents dans toutes les parties du forage. L'auteur suppose que leur illitisation fut précoce, antérieure à la diagenèse d'enfouissement. Celle-ci provoque une croissance des cristaux d'illite et de chlorite qui s'affirme vers la base de la série.

LONG, NEGLIA et FAVRETTO (1964, 1966), LONG et NEGLIA (1968) analysent les minéraux argileux et les solutions interstitielles d'un certain nombre de forages de Libye, de Tunisie, de Sicile et d'Italie du Nord. La montmorillonite régresse et disparaît en profondeur, mais les interstratifiés se développent au contraire pour des profondeurs de 1 000 à 3 000 m. Ils demeurent jusqu'à 5 000 m dans le forage de Pachino 4 (Secondaire et Tertiaire de Sicile), présentant une association minéralogique comparable à celle de Pierrefeu (fig. 54). Dans le Miocène de Gagliano (Sicile), les interstratifiés I-M deviennent ordonnés au dessous de 2 000 m de profondeur et jusqu'à 3 000 m, base des forages.

MUFFLER et WHITE (1969) observent un passage continu de la montmorillonite à l'illite par l'intermédiaire d'interstratifiés désordonnés. La zone de stabilité des interstratifiés se situe dans un domaine de température allant de 80 à 200°C, ce qui correspond à des pronfondeurs de 1 000 à 3 000 m dans ce bassin californien de Salton Sea, où le gradient géothermique est exceptionnellement élevé.

L'ensemble des faits que je viens de citer et de ceux que j'ai exposés dans ce mémoire est remarquablement cohérent. La transformation en profondeur des interstratifiés illite-montmorillonite vers l'illite est démontrée. Faute de pouvoir isoler ces minéraux, il règne une certaine imprécision sur les mécanismes cristallochimiques intimes de cette transformation. Des modifications interviennent sans doute au sein du feuillet, dans les octaèdres, et peut-être même dans les tétraèdres, mais on n'est pas en mesure de le prouver. L'essentiel des transformations se situe cependant au niveau des espaces interfoliaires où les molécules d'eau et les cations échangeables sont peu à peu remplacés par Na^+ et K^+ non échangeables.

Mais la variation de la composition chimique des minéraux n'est pas nécessaire pour expliquer des changements cristallographiques, tels que la diminution de la capacité de gonflement. HOWER (1967), étudiant 26 interstratifiés illite-montmorillonite de provenances diverses, a pu montrer que le gonflement dépendait du degré d'ordre dans l'interstratification, beaucoup plus que de la charge des feuillets, donc de la composition chimique globale. La diminution progressive de la capacité de gonflement des interstratifiés I-M, dans la diagenèse profonde, pourrait donc être en partie topochimique, et résulter d'une mise en ordre progressive des réseaux. Cette hypothèse trouve un sérieux appui dans l'observation effective de structures interstratifiées régulières.

B - Développement d'interstratifiés réguliers de type allevardite ou rectorite

1 - Mise en évidence

J'ai observé fréquemment une tendance à la régularité au sein des interstratifiés irréguliers dont il vient d'être question. Cette observation a été faite également par LONG et NEGLIA (1968) à la base de séries tertiaires en Sicile, et par KODAMA et BRYDON (1966) dans des séries secondaires au Canada. La tendance à la régularité est manifeste à Pierrefeu par exemple (fig. 55, carotte n° 7).

J'ai observé aussi de véritables édifices interstratifiés réguliers à Assejmi (p. 116 et fig. 45) et dans la formation des "terres noires" (p. 160). J'ai montré que le comportement aux rayons X était celui de l'allevardite (ou rectorite).

La présence d'allevardite (ou rectorite) dans les minéraux argileux des sédiments n'a été signalée, à ma connaissance, que par KOSSOVSKAYA (1966) et par les chercheurs du Centre de Recherches de Pau (SNPA). Ceux-ci la rencontrent dans l'Aptien du bassin d'Aquitaine (ESQUEVIN et KULBICKI, 1963) et dans le Jurassique et le Crétacé du Queensland (STEVAUX, 1967).

2 - Données cristallographiques

En 1891 BRACKETT et WILLIAMS décrivent sous le nom de rectorite un minéral papyracé, blanchâtre, à l'aspect de "cuir de montagne", en poches dans des grès siluriens. Il devient gélatineux dans l'eau. BRADLEY (1950) en fait l'analyse structurale, et le définit comme un interstratifié régulier pyrophyllite-vermiculite. Le feuillet "vermiculite" est d'ailleurs gonflant par adsorption de glycol. Les espaces d(001) sont 25/12,5/8,33/6,25/5,0 etc... pour l'échantillon brut. d(001) passe à 26,5 par traitement au glycol.

En 1934, CAILLÈRE décrit un minéral d'aspect semblable à la rectorite. Il se trouve associé à la calcite dans des fentes au sein de calcaires jurassiques à la Table, près d'Allevard (Savoie). CAILLÈRE lui donne un nom nouveau, l'allevardite. L'étude en est reprise maintes fois (LEMOINE, 1935; CAILLÈRE, 1936; DERIBÉRÉ, 1943; CAILLÈRE et HÉNIN, 1946), mais ce n'est qu'en 1950 que la structure est élucidée par CAILLÈRE, MATHIEU-SICAUD et HÉNIN (1950). BRINDLEY (1956) confirme le schéma proposé. Il s'agit d'un interstratifié régulier mica-montmorillonite dont la formule structurale globale est :

$$Na_{0.3}\ K_{0.1}\ Ca_{0.08}\ (Al_{1.9}\ Fe_{0.07}\ Mg_{0.04})\ (Si_{3.2}\ Al_{0.8})\ O_{10}\ (OH)_2\ (H_2O)_{0.3}$$

Cet interstratifié est donc formé des deux termes paragonite et beidellite.

BROWN et WEIR (1963) ont démontré l'identité de l'allevardite et de la rectorite, toutes deux conformes au schéma de CAILLÈRE et de BRINDLEY : les feuillets T.O.T. sont dioctaédriques, alumineux, et la couche tétraédrique a pour formule moyenne $Si_{3.25}\ Al_{0.75}$. Les interfoliaires sont de deux types, alternant régulièrement :

- type mica, non gonflant, avec 0,85 charges positives par demi-maille dont 0,80 pour Na^+ en moyenne.

- type montmorillonite, gonflant, avec 0,35 charges positives par demi-maille assurées par des cations échangeables.

La synonymie allevardite = caillérite = tabulite = déribérite, signalée par FAUST et FLEISCHER (1952), comprend en outre le terme rectorite. Celui-ci bénéficie de la règle de priorité.

Bon nombre de travaux cristallographiques ont apporté des retouches ou des précisions au schéma structural proposé. Ce sont ceux de KOROLEV (1960), SHIMODA et SUDO (1960), WEIR, NIXON et WOOD (1962), KODAMA (1966). Celui-ci démontre que les feuillets gonflants sont montmorillonitiques ou beidellitiques dans le rapport de 1 à 3. Il propose que le terme de rectorite soit réservé aux interstratifiés réguliers 1/1 paragonite-montmorillonite.

3 - Conditions de genèse

La plupart des gisements connus sont de type hydrothermal. C'est le cas de tous les échantillons étudiés par les minéralogistes dont je viens de citer les travaux, ainsi que par HEYSTEK (1954), KODAMA (1958), SUDO, HAYASHI et SHIMODA (1962), BRINDLEY et SANDALAKI (1963), RODRIGUEZ-GALLEGO et ALIAS-PEREZ (1965), et KOSSOVSKAYA (1966).

La présence de minéraux argileux à structure d'allevardite dans la diagenèse profonde témoigne d'un stade d'équilibre au cours de la transformation des interstratifiés irréguliers illite-montmorillonite. BURST (1969) a montré comment les montmorillonites se déshydrataient par étapes, perdant d'abord leur première couche d'eau interfoliaire, puis la seconde (voir chapitre précédent). Je montre ici que dans la perte de la dernière couche d'eau, une nouvelle étape peut être distinguée : c'est celle où le remplacement des molécules d'eau par Na^+ et K^+ se fait un feuillet sur deux. MILLOT (1964, p. 371 et 428) a fait remarquer que la nature tend à réaliser des structures présentant un minimum d'énergie interne. La régularité, l'ordre, sont avantageux au point de vue énergétique. C'est ainsi que GRIM, DROSTE et BRADLEY (1960) ont tenté d'expliquer la genèse de corrensite. La genèse d'allevardite répond au même souci d'économie. La déshydratation et la fermeture des feuillets montmorillonitiques entraîne une "démixtion" des cations interfoliaires (GLAESER, 1953; MERING et GLAESER, 1953), et une nouvelle répartition un feuillet sur deux. Cette réalisation exprime l'équilibre entre les minéraux et les solutions interstitielles, pour des conditions physiques et chimiques qui sont celles de la diagenèse profonde.

Je ne possède pas de donnée sur la constitution chimique de ces minéraux argileux de type allevardite, mais on peut prévoir que leurs feuillets micacés sont riches en sodium. Je vois trois raisons à cela.

- Toutes les allevardites et rectorites étudiées jusqu'ici ont en moyenne un rapport Na/K égal à 4.

- Les solutions interstitielles de la diagenèse profonde sont beaucoup plus riches en sodium qu'en potassium.

- Les illites et séricites de l'anchizone et de l'épizone sont sodiques, paragonitiques, et sont issues des argiles micacées de la diagenèse.

En résumé l'étude des interstratifiés réguliers dans la diagenèse profonde permet de faire les propositions suivantes.

-- Les minéraux argileux des séries détritiques soumises à une diagenèse d'enfouissement prononcée renferment des interstratifiés réguliers illite-montmorillonite.

-- Ils ont une structure comparable à celle de l'allevardite (ou rectorite).

-- Ils correspondent à un stade d'équilibre dans la déshydratation des minéraux argileux micacés gonflants.

-- Ils réalisent vraisemblablement une incorporation du sodium dans la phase minéralogique au cours du cycle géochimique des éléments, avant que ne se développe la feldspathisation.

IV - CONCLUSIONS SUR LA PLACE DES INTERSTRATIFIES DANS L'EVOLUTION DIAGENETIQUE

Les observations faites, ou rapportées, dans les pages qui précèdent, et les conclusions auxquelles je suis arrivé, peuvent se résumer comme suit.

1 - Les interstratifiés irréguliers représentent des étapes intermédiaires dans les transformations des minéraux.

2 - Dans les transformations négatives, ou dégradations, ils apparaissent en de multiples combinaisons, et ont fait l'objet d'un nombre considérable d'observations. Ils font partie des argiles des sols.

3 - Dans les transformations positives, ou agradations, les interstratifiés irréguliers sont moins bien connus. J'ai montré que le groupe des chlorites-vermiculites, et celui des illites-montmorillonites, offraient une transition continue entre des minéraux T.O.T. très dégradés, d'une part, les chlorites et les illites d'autre part (fig. 100).

4 - Il y a une symétrie apparente dans ces deux itinéraires. Un interstratifié issu des altérations continentales ne retrouvera pas nécessairement, dans la diagenèse, la structure silicatée dont il dérive. La "mémoire" des minéraux dans l'agradation (GRIM et BRADLEY, 1955) ne s'exerce que pour les particules micacées faiblement dégradées. Elle est généralement défaillante, ainsi que l'a fait remarquer MILLOT (1964, p. 369 et 1966, p. 11). Tous les interstratifiés, de quelqu'origine qu'ils soient, passent inéluctablement à l'illite et à la chlorite dans la diagenèse profonde.

5 - L'agradation des minéraux T.O.T. dégradés consiste essentiellement en une perte d'eau, une adsorption des ions Na^+, K^+, Mg^{2+}, et un réarrangement des ions au sein des feuillets. La migration des ions s'effectue depuis les solutions interstitielles vers les interfoliaires, des interfoliaires vers les couches octaédriques (Mg, Fe, Al) éventuellement tétraédriques (Al) selon le schéma exposé par MILLOT (1966) (voir fig. 109).

6 - Les fournisseurs d'ions sont le milieu de sédimentation, puis les solutions interstitielles incorporées au sédiment, de sorte que les transformations de la sédimentation et de la diagenèse précoce sont en continuité.

7 - L'agradation diagénétique n'est pas seulement une incorporation d'éléments dans les réseaux ; c'est aussi une remise en ordre des réseaux. Celle-ci se traduit par une diminution de la capacité de gonflement des minéraux, malgré leur charge foliaire encore faible.

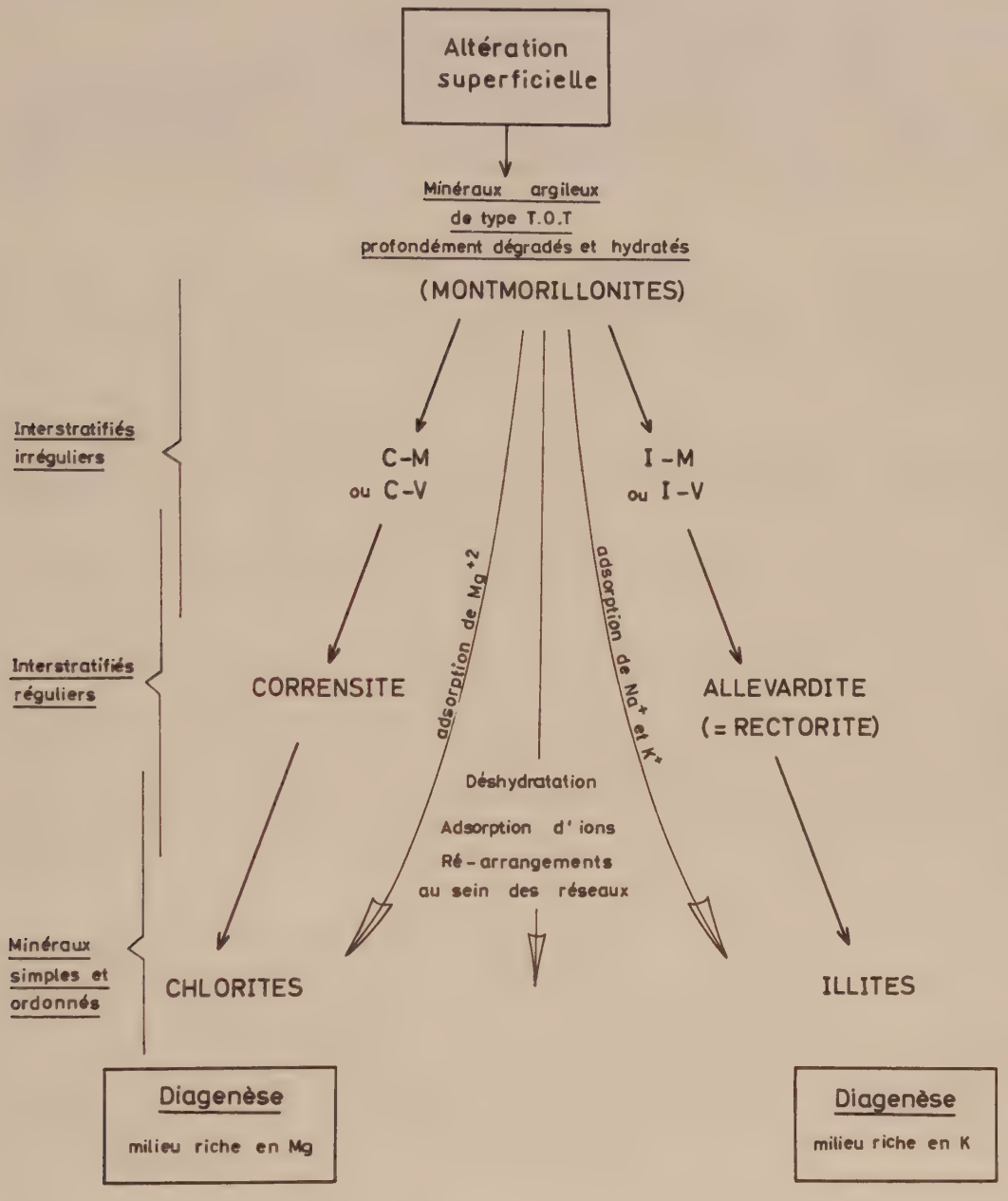


Fig. 100 - Les interstratifiés réguliers dans la diagenèse.
Parallélisme entre deux transformations minéralogiques s'effectuant dans la diagenèse.
Toutes deux présentent une phase d'interstratification régulière correspondant à un agencement des ions un feuillet sur deux. Ce dispositif est énergétiquement économique : il témoigne donc d'un équilibre entre les minéraux et leur milieu.

8 - Lorsque la composition chimique s'y prête, l'agradation diagénétique peut engendrer des structures interstratifiées régulières, structures d'équilibre, correspondant à un minimum d'énergie interne. Il se développe (fig. 100) :

- de la corrensite dans les milieux riches en magnésium,
- de l'allevardite dans les milieux riches en alcalins.

Ces minéraux ne sont guère utilisables pour la zonéographie de la diagenèse. Ils témoignent davantage des conditions de milieu que des conditions d'enfouissement.

9 - Le développement d'interstratifiés réguliers dans la diagenèse profonde, d'allevardite en particulier, souligne la parenté de cette zone de l'écorce avec celle de l'hydrothermalisme, où les minéraux argileux interstratifiés réguliers sont fréquents (SUDO, HAYASHI et SHIMODA, 1962). Bien que les conditions de pression et le milieu géochimique soient très différents, l'activité chimique de l'eau est considérable dans les deux cas, et les températures sont du même ordre.

CHAPITRE IV

L'ILLITE DANS LA ZONE DE DIAGENÈSE

L'illite est, de tous les minéraux argileux, le plus répandu. Les connaissances acquises sur sa cristallographie, sa constitution chimique, ses conditions de gisement sont très nombreuses. Tenter une synthèse de ces connaissances sortirait du cadre de ce chapitre. Je me propose seulement les trois objectifs suivants :

- donner les éléments bibliographiques indispensables pour aborder la minéralogie et de la géologie des minéraux du groupe de l'illite ;

- examiner le comportement de l'illite dans la diagenèse, en passant en revue ses principaux paramètres, tels qu'ils ont été mesurés dans la III° partie de ce mémoire ; les confronter aux résultats obtenus par d'autres chercheurs ;

- esquisser l'itinéraire suivi par les minéraux argileux du groupe de l'illite à travers les zones de la diagenèse et du métamorphisme.

I - MINERALOGIE ET GEOLOGIE DES MINERAUX ARGILEUX MICACES

Les illites sont des minéraux argileux dont le réseau est très voisin de celui des micas. Le terme d'illite, qui les désigne, est de création relativement récente (GRIM, BRAY et BRADLEY, 1937). Malgré les nombreuses discussions auxquelles il a donné lieu, il s'est imposé pour nommer, non pas une espèce minérale, mais un groupe de minéraux argileux, ayant la même structure, celle des micas : c'est donc plus qu'un "field term" (YODER et EUGSTER, 1955). Les auteurs soviétiques sont les seuls à ne pas utiliser le terme d'illite, qu'ils remplacent par celui d'hydromica.

1 - Les travaux antérieurs à la définition de l'illite (1937)

Des minéraux argileux à composition chimique de micas ont été décrits sous les noms de bravaisite (MALLARD, 1878), d'hydromuscovite (JOHNSTONE, 1889), d'hydromica (GALPIN, 1912), de "potash bearing clay" (WHERRY, ROSS et KERR, 1929; ROSS et KERR, 1931). La diffraction des rayons X par les réseaux cristallins a permis de les identifier comme des "mica clays" (HENDRICKS et FRY, 1930), hydromicas (GRUNER, 1934), "glimmerartige Tonmineralien" (HOFMANN, ENDELL et WILM, 1934), Glimmerton (ENDELL, HOFMANN et MÄGDEFRAU, 1935; MÄGDEFRAU et HOFMANN, 1937), "sericite-like mineral" (GRIM, 1935), hydromuscovite (BRAMMAL, LEECH et BANNISTER, 1937).

2 - Les travaux postérieurs à 1937

Ils sont trop nombreux pour être analysés, ni mêmes cités, ainsi que je l'ai dit tout à l'heure. Ceux qui présentent un intérêt pour la compréhension des faits de diagenèse seront évoqués au moment opportun.

GRIM, BRAY et BRADLEY (1937) définissent le terme d'illite d'après des argiles de l'Illinois. Il est controversé par ceux qui estiment que celui de bravaisite bénéficie de l'antériorité

(FLEISHER, 1943; ROSS, 1945; RIVIÈRE, 1946). Mais il s'avère que la bravaisite est un interstratifié illite-montmorillonite (GRIM et ROWLAND, 1942; NAGELSCHMIDT, 1944; BRADLEY, 1945). GRIM et BRADLEY (1948) reprennent alors et confirment la définition de l'illite.

Le comportement des minéraux du groupe de l'illite aux rayons X est décrit par GRIM, BRADLEY et BROWN (1951), BROWN (1955), BRADLEY et GRIM (1961) ; les résultats de l'analyse thermique différentielle sont donnés par TABOADELA et FERRANDIS (1957) ; la constitution chimique est étudiée par FOSTER (1954), HOWER et MOWATT (1966), REESMAN et KELLER (1967) et WEAVER (1968).

II - LA MORPHOLOGIE DES PARTICULES D'ILLITE

Il est courant d'affirmer que les agradations diagénétiques s'expriment, entre autres choses, par la croissance des cristaux. Dans la séquence qui, des argiles, conduit aux schistes puis aux micaschistes, l'augmentation de la taille des minéraux est certaine. Il m'a donc semblé intéressant de faire une recherche systématique par microscopie électronique à travers deux séries continues.

1 - Logbaba : passage de l'illite-montmorillonite à l'illite (diagenèse moyenne)

Le passage continu mis en évidence sur la figure 10 se traduit par une variation continue du diagramme de rayons X. En revanche, il se montre indécelable au microscope électronique. L'aspect moyen des particules se rapproche plus de celui des montmorillonites que de celui des illites : contours diffus, aspect émêché, taille inférieure au demi-micron. Le groupe des illites ne possède pas de caractères morphologiques bien distincts. L'atlas de BEUTELSPACHER et VAN DER MAREL (1968) présente des figures, où les formes varient peu, et semblent sans rapport avec le faciès de la roche d'origine. Une tentative a cependant été faite par KOTELNIKOV (1965), pour qui les paillettes isométriques sont celles des illites détritiques, tandis que les paillettes allongées en forme de lattes représentent les illites néoformées ou transformées.

2 - "Terres Noires" : passage de l'illite à la séricite (diagenèse poussée, métamorphisme)

Les variations morphologiques sont ici évidentes. Je les ai décrites page 161 et j'en ai donné deux images extrêmes sur la planche II. On observe, outre un accroissement de la taille, un changement des contours et de la transparence. Les particules, en devenant plus grandes, deviennent aussi plus fines, plus régulières en épaisseur, et elles commencent à présenter les effets de moiré toujours observables dans les vrais micas.

La grande simplicité de la méthode utilisée (voir p. 49) devrait permettre d'étendre ces résultats, et fournir un critère supplémentaire pour la définition de l'anchizone qui sera donnée à la fin de ce chapitre.

III - LES VARIETES POLYMORPHIQUES DE L'ILLITE

1 - Généralités

Le polymorphisme des minéraux micacés a été défini par HENDRICKS et JEFFERSON (1939). YODER et EUGSTER (1954), LEVINSON (1955), puis SMITH et YODER (1956) ont montré que les muscovites et les illites naturelles ne présentaient que les formes 1M, 2M et 3T, plus une forme tout à fait désordonnée nommée 1Md. La forme 3T est beaucoup plus rare que les autres, et pratiquement inconnue dans les illites. La stabilité croit dans le sens 1Md → 1M → 2M, et une élévation de température favorise cette évolution (YODER et EUGSTER, 1954; VELDE, 1965; ROSS, TAKEDA et WONES, 1966).

2 - Méthodes de détermination

La détermination de la variété polymorphique d'un mica pur et bien cristallisé n'offre guère de difficulté. Ce n'est pas le cas pour l'illite, souvent mal cristallisée, dont les raies éloignées ont une faible intensité et qui, de plus, est généralement mêlée à d'autres minéraux argileux dont on ne peut la séparer.

La méthode que j'ai utilisée (voir IIème partie) pour déterminer le pourcentage des trois formes principales 1Md, 1M et 2M, s'inspire de la technique de VELDE et HOWER (1963). MAXWELL et HOWER (1967) ont perfectionné cette technique, en faisant bouillir l'argile dans HCl 2N pendant 30 minutes pour détruire kaolinite et chlorite, en utilisant les pics à 2,80 Å (2M) et 2,58 Å (2M + 1Md) enregistrés à 1/4°/minute (2θ), et en mesurant non pas la hauteur des pics, mais leur surface, au planimètre.

La longueur de ces opérations, la nécessité d'enregistrer un diagramme désorienté, qui n'est pas une manoeuvre de routine dans les laboratoires de sédimentologie, sont les raisons pour lesquelles peu de mesures sur les polymorphes de l'illite sont disponibles à ce jour. J'en donnerai une revue après avoir rappelé les résultats que j'ai présentés dans les chapitres précédents.

3 - Résultats des mesures

a) Ce mémoire

PIERREFEU

On se reportera à la figure 54 et à la page 139. 1 Md est la forme dominante. 2M est représenté de façon discontinue et se montre plus important à la base de la série. 1M est peu représenté. Il est douteux que l'augmentation de 2M au fond du forage soit un effet de recristallisation diagénétique, puisque la cristallinité de l'illite, un des paramètres les plus sensibles, ne traduit aucune amélioration. Il faut voir, dans la répartition des polymorphes à Pierrefeu, le jeu d'une sédimentation détritique entraînant des illites ayant encore gardé leur structure d'origine (1M ou 2M), ou ayant acquis au cours de l'altération et des transports la structure désordonnée 1Md. Cette interprétation est en accord avec les conclusions générales sur l'évolution de cette série (voir p. 144).

ADAMSWILLER

La répartition des polymorphes a été indiquée sur la figure 63 et discutée page 155. Cette série offre un bon exemple de variations d'ordre sédimentologique. Le Carbonifère présente essentiellement le type 1Md, issu de l'érosion des couvertures hercyniennes, et sédimenté dans un milieu paralique sans doute peu agradant. Le Permien, en revanche, renferme des illites beaucoup plus cristallines et de type 1M et 2M. Elles proviennent d'une érosion plus vive, s'exerçant sur le socle hercynien qui commence à voir le jour : les minéraux micacés sont donc peu altérés. De plus, le caractère confiné des bassins permiens a pu favoriser une agradation diagénétique conduisant aux types 1M et 2M.

TERRES NOIRES

La figure 65 résume les principales variations observées dans une coupe ouest-est en bordure de l'arc alpin. L'illite n'y présente que les deux variétés polymorphiques 1Md et 2M. Le pourcentage de 2M est fonction du rapport d'intensité des pics à 3,74 et 4,46 Å. Le métamorphisme alpin a pour effet de provoquer la recristallisation de l'illite 1Md qui passe progressivement à 90 % de 2M(p. 159).

b) Autres travaux d'ensemble

1 - BAILEY, HURLEY, FAIRBAIRN et PINSON (1962) effectuent des mesures d'âge par la méthode K-Ar sur des illites de provenances diverses, et concluent que la variété 2M est d'origine essentiellement détritique.

2 - REYNOLDS (1963) étudie les illites dans 29 échantillons de calcaires marneux des séries de Belt et de Jasper dans le Précambrien des Rocheuses. La forme 1Md, d'abord dominante, cède la place à la forme 2M quand la série passe à un métamorphisme plus intense.

3 - HOWER et ses collaborateurs ont apporté un grand nombre d'observations sur le polymorphisme de l'illite en étudiant une centaine de schistes paléozoïques (VELDE et HOWER, 1963), une vingtaine d'illites d'âges divers (HOWER et MOWATT, 1966), et enfin une coupe dans la série précambrienne de Belt (Montagnes Rocheuses) à travers des zones de métamorphisme croissant (MAXWELL et HOWER, 1967). Les résultats sont très cohérents. Il se confirme que les formes 1Md et 2M sont pratiquement les seules présentes dans les vieilles séries détritiques, et qu'un métamorphisme, même léger, provoque la réaction 1Md → 2M.

4 - KISCH (1966, 1968) étudie les recristallisations diagénétiques et métamorphiques dans le bassin permien de Bowen (Australie). Les illites des tonstein ont la structure 1M. Les illites détritiques sont 2M.

5 - LOGVINENKO et KARPOVA (1968) font état des résultats soviétiques, selon lesquels les quatre stades de la diagenèse profonde seraient caractérisés par les variétés polymorphiques suivantes (voir p. 23) :

- catagenèse initiale : illite 1M et 1Md,
- catagenèse profonde : illite 1M,
- métagenèse initiale : illite $2M_1$,
- métagenèse profonde : illite $2M_1$.

Aucun fait n'est exposé pour justifier ce schéma. Il semble qu'il soit bien difficile, dans l'état actuel des techniques, d'identifier les sous-variétés $2M_1$ et $2M_2$ au sein des mélanges que sont les fractions argileuses.

c) Mesures isolées

Les variétés polymorphiques 2M sont identifiées par NELSON (1956), MANKIN et DODD (1963), GAUDETTE, EADES et GRIM (1966). La variété 1M est signalée dans l'altération de roches éruptives (MACKENZIE, WALKER et HART, 1949), dans des dépôts récents de playa (DROSTE, 1961), et au sein de grès paléozoïques au Sahara (TRIPLEHORN, 1967).

Une tentative a été faite pour relier les variétés polymorphiques de l'illite avec le lithofaciès (VLASOV, 1966). La forme 2M, détritique, est ubiquiste. Les faciès argileux renferment en outre 1Md, les faciès gréseux 1M. L'auteur suggère que les recristallisations diagénétiques, plus importantes dans les niveaux perméables comme les grès, ont provoqué la transformation 1Md → 1M.

4 - Conclusions

L'ensemble des résultats qu'on vient d'exposer permet d'avoir une vue assez claire sur la répartition des variétés polymorphiques de l'illite à la surface de l'écorce terrestre.

* L'illite présente trois variétés polymorphiques courantes : 1Md, 1M et 2M. Elles ont, dans cet ordre, une stabilité croissante avec la température.

* 1Md, forme désordonnée, se développe au cours des phénomènes d'altération, d'érosion, de transport et de sédimentation. C'est la variété la plus courante pour l'illite des argiles sédimentaires.

* 1M est assez rare. Cette variété a été observée dans des conditions de diagenèse diverses :

- altération superficielle ou hyposuperficielle (diagenèse régressive),
- milieux sursalés,
- milieux poreux,
- recristallisation des tonstein.

Ces milieux pourraient avoir réalisé la transformation 1Md → 1M par une diagenèse particulière.

* 2M est la forme la plus stable. C'est celle des micas dans les zones profondes. Lorsque les hydrolyses seront peu poussées sur le continent (climat froid ou sec), ou que les érosions seront assez vives pour empêcher les altérations de s'exercer, les illites détritiques auront alors la structure 2M.

D'autre part, une élévation de température comme celle de la diagenèse profonde ou du métamorphisme provoquent la réaction

1Md et 1M → 2M (diagenèse profonde, métamorphisme)

La variété polymorphique 2M est donc celle de l'illite des vieux schistes.

* Enfin, il serait inexact de croire que l'héritage reçu et la température subie sont les seuls facteurs réglant la distribution des polymorphes de l'illite. Il apparaît déjà comme certain que la taille des particules intervient, ainsi que leur constitution chimique. Les petites particules (<0,1μ) acquièrent plus facilement la structure désordonnée 1Md au cours de la sédimentation. Les illites riches en Fe et Mg, donc voisines des glauconites, recristallisent de préférence sous la forme 1M. Mais une diagenèse poussée, à la limite du métamorphisme, réalise dans tous les cas la structure 2M, la seule stable dans les zones profondes.

IV - LA FERMETURE DES FEUILLETS : CRISTALLINITE DE L'ILLITE

1 - Introduction. Définitions

L'étude des interstratifiés de type illite-montmorillonite au chapitre précédent a permis de comprendre comment les agradations diagénétiques conduisaient peu à peu à l'illite. Le pic de base, large et diffus, entre 10 et 12 Å, se rapproche de 10 Å et s'affine, au fur et à mesure que se réalisent

- une évacuation de l'eau interfoliaire,
- une adsorption et une fixation de potassium entre les feuillets,
- un ré-arrangement des ions au sein même des feuillets.

La morphologie du pic à 10 Å vers les petits angles traduit cette évolution. Aux interstratifiés fait suite une illite ouverte, où le taux d'interfoliaires à comportement de montmorillonite ou de vermiculite est compris entre 0 et 20 %. Cette illite ouverte se ferme peu à peu. On dit que sa "cristallinité" s'améliore.

J'ai exposé pages 51 et 53 (fig. 5 et 6) la méthode que j'ai utilisée pour mesurer ce degré de cristallinité. Je précise à nouveau que les "indices de cristallinité" présentés dans ce mémoire sont homogènes, et se rapportent tous aux conditions expérimentales indiquées page 53. Les travaux antérieurs auxquels il sera fait référence tout à l'heure ont utilisé des indices de dimensions variées. Je crois nécessaire de donner sur la figure 101 la correspondance des indices adoptés au Centre de Recherches de Pau (S.N.P.A.) et au Centre de Sédimentologie et de Géochimie de Srasbourg (C.N.R.S.).

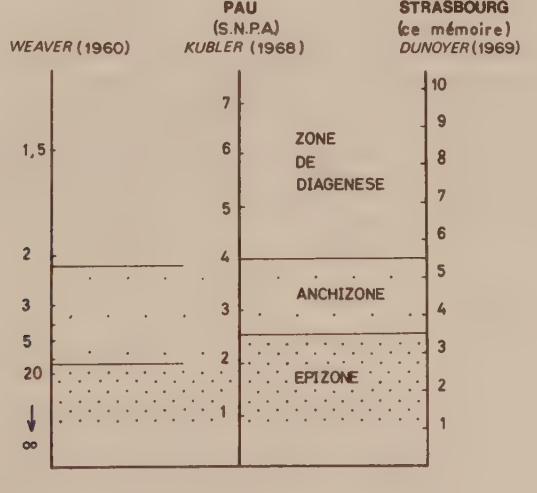


Fig. 101 - Tableau de correspondances des indices de cristallinité de l'illite. Ces différents indices correspondent à des conditions expérimentales différentes qui ont été indiquées p. 53.

2 - Résultats des mesures

a) Généralités

WEAVER (1960, 1961) eut l'idée de chiffrer l'acuité du pic à 10 de l'illite) (voir fig. 5), et sa technique lui permit de déceler dans le Paléozoïque des Ouachita Mountains des zones de très faible métamorphisme.

L'intérêt de cette technique est passé inaperçu aux Etats-Unis, alors qu'elle était reprise en France dès 1963 à Bordeaux (C.F.P.), à Strasbourg (Faculté des Sciences) puis à Pau (S.N.P.A.), en étroite collaboration. Certains résultats intéressent la recherche pétrolière et sont inédits. D'autres ont fait l'objet des publications suivantes : KUBLER (1964, 1966, 1967, 1968), DUNOYER et KUBLER (1966), DUNOYER, ARTRU et FERRERO (1966), DUNOYER, FERRERO et KUBLER (1968), ESQUEVIN (1969). Ce sont, à ma connaissance, les seuls travaux sur la cristallinité de l'illite dans la diagenèse profonde, tandis que des mesures ont été faites sur la cristallinité dans la sédimentation récente (MONACO, 1965; CHAMLEY, 1967, 1968) et dans l'altération superficielle (JARON, 1967), ce dernier utilisant un indice angulaire assez particulier.

Je regrouperai maintenant les données éparses dans la III° partie de ce mémoire, en examinant l'un après l'autre les facteurs qui peuvent influencer la cristallinité de l'illite.

b) Cristallinité et paléogéographie

La cristallinité de l'illite issue des zones continentales en voie d'érosion est fonction de l'intensité des altérations. JARON (1967) et PAQUET (1969) ont montré comment l'illite s'ouvrait peu à peu dans les profils d'altération, et CHAMLEY (1967, 1968) a pu retrouver dans la cristallinité de l'illite des vases méditerranéennes la trace des alternances climatiques du Quaternaire. Les périodes froides correspondent, bien entendu, à des altérations moins poussées, donc des cristallinités plus fortes.

Dans les sédiments anciens, j'ai pu mettre en évidence deux cas particulièrement démonstratifs d'une influence paléogéographique.

L'ORDOVICIEN DU SAHARA

L'illite y présente une forte cristallinité. Celle-ci est en relation avec les conditions périglaciaires qui régnaient alors dans cette région. La question a été discutée à propos du bassin de Polignac (voir p. 93 et fig. 39) et à propos du bassin de Tindouf (voir p. 116 et fig. 46). En résumé, l'illite de l'Ordovicien saharien est détritique ; sa forte cristallinité résulte de la faiblesse des altérations chimiques sur un continent où affleurent des séries cristallines et cristallophylliennes précambriennes.(1)

LE PERMO-CARBONIFERE d'ADAMSWILLER (fig. 63 et 64)

J'ai eu l'occasion d'exposer pages 153 à 156, puis page 237, à propos des variétés polymorphiques, que les changements de qualité de l'illite du Carbonifère au Permien pouvaient être mis sur le compte de la nature des roches livrées à l'érosion, de la vitesse de cette érosion, et des conditions paléogéographiques du bassin. La cristallinité de l'illite est plus forte dans le Permien, parce que le socle hercynien était mis à jour sous sa couverture sédimentaire, que l'érosion l'attaquait vivement, et que les petits bassins confinés du Permien cicatrisaient rapidement des minéraux à peine dégradés.

c) Cristallinité et lithologie

Dans une séquence lithologique, la cristallinité de l'illite peut varier avec le faciès pour deux raisons bien différentes.

1 - La cristallinité de l'illite détritique est d'autant plus élevée que sa granulométrie est plus forte. Les particules les plus fines auront été les plus sensibles à la dégradation et à l'hydratation dans l'altération et le transport. Ainsi les niveaux détritiques relativement grossiers auront-ils des illites plus cristallines que les niveaux pélitiques et argileux fins.

2 - L'agradation de l'illite par les solutions interstitielles au cours de la diagenèse précoce se fait plus facilement dans les milieux poreux, où ces solutions peuvent circuler. Les arénites présenteront donc des illites plus cristallines que les argilites.

---

(1) Voir note infrapaginale p. 119

De très nombreux exemples des variations qualitatives et quantitatives de l'illite en relation avec le faciès ont été donnés (MILLOT, 1965). Un cas particulièrement probant a été signalé récemment dans la sédimentation rythmique miocène au Portugal (HAGUENAUER, 1969).

KUBLER (1964) a montré dans le Sahara algérien et libyen que la cristallinité de l'illite ne pouvait être un repère valable de diagenèse profonde que dans la mesure où cette cristallinité était devenue indépendante de la lithologie. Il y a en effet un seuil de recristallisation au-delà duquel les variations liées au faciès sont absorbées.

d) Cristallinité et géochimie

Le perfectionnement du réseau de l'illite, que traduit sa cristallinité, se fait plus ou moins vite selon la constitution chimique des particules d'illite elles-mêmes, et aussi du milieu qui les baigne. Deux éléments paraissent jouer un rôle majeur.

1 - Teneur en aluminium de la couche octaédrique

ESQUEVIN (1969) a suggéré qu'un rapport Al/Fe + Mg élevé dans les octaèdres favorisait la recristallisation de l'illite. Mes résultats confirment cette manière de voir. Le Trias gréseux du forage de PA 1 (p. 108 , fig. 41) est particulièrement démonstratif. Il est donc important de tenir compte de la composition des octaèdres, pour que la cristallinité de l'illite puisse servir valablement de repère dans la diagenèse profonde.

2 - Teneur en sodium des espaces interfoliaires

Les solutions interstitielles de la diagenèse sont d'origine marine : elles sont donc riches en sodium. Le sodium entre facilement dans le réseau des tectosilicates (zéolites sodiques, albite). Les phyllosilicates, en revanche, l'acceptent difficilement. Le sodium est supplanté dans les espaces interfoliaires d'abord par le magnésium, puis par le potassium ("equivalence level" de POWERS, 1959). J'ai montré cependant l'adsorption du sodium à deux étapes sur le chemin des profondeurs :

- dans la diagenèse profonde, où se développent les allevardites dont la nature partiellement sodique, sans être prouvée, est cependant très probable (p. 230 à 234) ;

- dans l'épizone métamorphique, où croissent les muscovites paragonitiques et les paragonites (p. 249 et 253).

L'allevardite présente un pic à 12 Å ; la paragonite se situe à 9,6 Å. Le développement d'une phase allevarditique ou paragonitique au sein d'une population d'illite va donc avoir pour effet d'élargir le pic à 10 d'un côté ou de l'autre. Il faudra bien se garder de considérer cet élargissement comme une diminution de la cristallinité. Il faudra par conséquent surveiller l'apparition d'allevardite ou de paragonite pour exploiter correctement les mesures de cristallinité de l'illite dans la diagenèse profonde et le métamorphisme.

On reviendra plus loin sur la cristallochimie des illites en général.

e) Cristallinité et diagenèse d'enfouissement

L'enfouissement réalise trois gradients : l'élévation de la température, de la pression hydrostatique, de la charge ionique des solutions interstitielles. Ces trois gradients concourent à la recristallisation de l'illite. Il en est un quatrième, celui des pressions transmises par les solides, pressions lithostatiques ou charges, contraintes orientées, tensions, ou stress. Elles sont responsables du développement des schistosités. Leur lien avec la recristallisation de l'illite est mal connu (KUBLER, 1967, 1968).

De nombreux exemples de recristallisation de l'illite en profondeur ont été donnés. Je renvoie particulièrement le lecteur aux chapitres concernant les forages du bassin de Polignac, d'Assejmi, de Contres, et du bassin des Terres Noires. Ces exemples montrent assez que les phénomènes sont trop complexes pour qu'on puisse établir une échelle des cristallinités, en regard de celle des profondeurs ou des températures. Les facteurs de variation, qu'on vient de passer en revue, rendent cette opération illusoire. En revanche, la cristallinité acquise par l'illite peut témoigner assez fidèlement du degré maximal de recristallisation atteint par le sédiment, même si on se trouve dans l'ignorance des conditions précises de cette recristallisation. L'étude d'un nombre considérable d'échantillons au Centre de Recherches de Pau (S. N. P. A.) a permis aux chercheurs de ce Centre, MM. ESQUEVIN et KUBLER en particulier, de définir une zone de transition entre diagenèse et métamorphisme (fig. 101). J'en indiquerai plus loin les caractéristiques.

f) Cristallinité et front de métamorphisme

La cristallinité de l'illite se révèle comme un paramètre assez sensible pour déceler des recristallisations métamorphiques, bien avant l'examen pétrographique classique. WEAVER (1960, 1961) en avait donné la première démonstration. D'autres suivirent, concernant les "terres noires" jurassiques des Alpes (DUNOYER, ARTRU et FERRERO, 1966; ce mémoire p. 159 et fig. 65), la zone nord-pyrénéenne (KUBLER, 1966), le Paléozoïque du nord de la France (DUNOYER, FERRERO et KUBLER, 1968).

L'utilisation statistique, à l'échelle régionale, des mesures de cristallinité est donc un indice très sûr de la zone d'influence thermique d'un métamorphisme. Les illites des schistes de Steige (fig. 107) ont été touchées par un métamorphisme général avant de subir leur classique métamorphisme de contact. Le Paléozoïque inférieur du synclinorium médian dans le massif armoricain est à la limite de l'épizone (fig. 104) ; celui de Galice (Espagne) est entièrement touché par le métamorphisme (fig. 106).

3 - Conclusion

J'ai montré que, malgré les multiples facteurs qui influencent le réseau des illites, les recristallisations de la diagenèse profonde et du métamorphisme pouvaient se lire dans la morphologie du pic à 10 Å. Celui-ci s'affine pour prendre la forme de celui des micas. J'ai indiqué au début de ce paragraphe les trois mécanismes probablement impliqués dans cette transformation. HOWER et MOWATT (1966) apportent des précisions sur les deux premiers. Ils démontrent que la capacité de gonflement des feuillets s'annule pour une teneur en potassium de 0,75 K^+ par demi-maille, c'est-à-dire bien avant que soit atteinte la formule des vrais micas (1,00 K^+). Bien que la capacité de gonflement soit nulle, le pic à 10 est encore large à la base, et les auteurs interprètent cette irrégularité en l'attribuant à des molécules d'eau "piégées" dans des interfoliaires déjà "verrouillés" par le potassium. Ce n'est qu'une hypothèse de travail. Il reste beaucoup à démontrer dans le phénomène de grande ampleur que représente la fermeture de l'illite et son passage au mica dans la diagenèse profonde et le métamorphisme, mais il est déjà assuré que le jeu des molécules d'eau et des ions alcalins y est essentiel. La mesure de la "cristallinité" de l'illite ne donne qu'une enveloppe du phénomène.

V - LA CRISTALLOCHIMIE DES ILLITES

1 - Données générales

Un travail d'ensemble a été tenté par WEAVER (1968) dans le but de cerner les variations de constitution chimique des minéraux argileux de structure 2:1 (ou T.O.T). Il m'a semblé utile de reprendre, dans cette optique, toutes les analyses chimiques d'illite dont on dispose dans la littérature, et d'en faire un examen statistique. J'ai retenu 85 illites associées aux roches sédimentaires, et dont la garantie de pureté paraissait suffisante. Le calcul des formules structurales a été fait en ramenant tous les cations, moins l'hydrogène, à 22 charges positives par demi-maille.

Les résultats sont exprimés par des points dans le diagramme triangulaire de SMITH et YODER (1956) (fig. 108). C'est une représentation commode qui a déjà été reprise par HOWER et MOWATT (1966) et WEAVER (1968). Des histogrammes précisent la variation de chacun des principaux éléments (fig. 102). Ces figures montrent l'hétérogénéité du groupe de l'illite. Mais elles montrent aussi son originalité. Les illites ne sont pas des micas fragmentés aux tailles argileuses, car les micas ont une charge foliaire généralement comprise entre 0,9 et 1, qui les situe sur le bord gauche de la figure 108. Les illites représentent des intermédiaires entre les montmorillonites et les micas. HOWER et MOWATT (1966) ont montré, dans cette même représentation triangulaire, que les interstratifiés illites-montmorillonites réalisaient cette transition progressive où s'observent simultanément :

- la diminution du taux d'interfoliaires gonflants,

- la diminution de la capacité d'échange cationique,

- l'augmentation de la charge tétraédrique et de la teneur en alcalins, tandis que la charge octaédrique reste sensiblement constante.

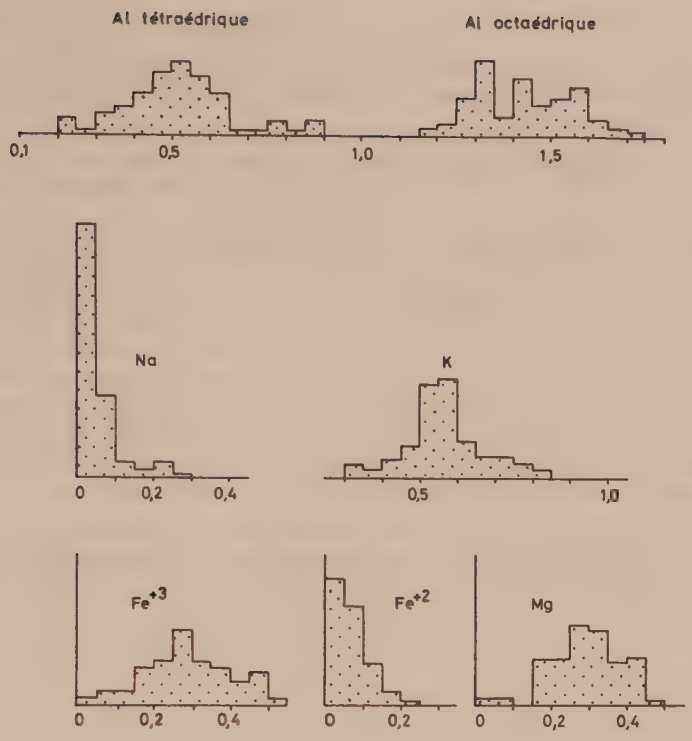


Fig. 102 - Histogrammes de fréquence du nombre de cations par demi-mailles dans 85 illites sédimentaires.

Il serait intéressant qu'une série continue d'échantillons, correspondant à une coupe de terrain ou de forage, permette de suivre les variations cristallochimiques de l'illite au cours de sa transformation en mica dans la diagenèse et le métamorphisme. Mais on ne dispose encore, à l'heure actuelle, d'aucun résultat de ce genre, car il est pratiquement impossible de purifier l'illite des faciès schisteux, où elle est toujours associée à la chlorite. Toutefois, des méthodes indirectes comme celle de la diffraction des rayons X permettent d'entrevoir les grandes lignes de l'évolution diagénétique des illites.

2 - Influence de la constitution chimique des illites sur leur diagramme de rayons X

L'intensité relative des raies de diffraction 00*l* est en relation avec la constitution chimique de la couche octaédrique dans les micas et les chlorites. NAGELSCHMIDT (1937) a montré que la raie à 5 Å était beaucoup plus forte pour les micas dioctaédriques, du type muscovite, que pour les trioctaédriques, du type biotite ou phlogopite. BROWN (1955) a poussé assez loin l'étude théorique et expérimentale des raies 00*l* pour les micas et les chlorites.

La première application géologique de ces données a été faite par KLINGEBIEL et LATOUCHE (1962), qui ont étudié la répartition stratigraphique des illites alumineuses et ferromagnésiennes, en mesurant le rapport d'intensité des raies à 5 et 10 Å. La deuxième tentative est celle d'ESQUEVIN (1969). On va s'y arrêter un moment.

ESQUEVIN soupçonne que la cristallinité des illites dépend non seulement de leur température de recristallisation, mais aussi de leur composition chimique. Comme il n'est pas possible d'analyser directement l'illite, toujours mêlée à d'autres minéraux argileux, il choisit un paramètre cristallochimique, le rapport de l'intensité des pics à 5 et 10 Å : I(002)/I(001). Il construit un diagramme, où chaque point représente une illite, caractérisée par son rapport I(002)/I(001) et sa cristallinité. Les points correspondant à une série donnée (une coupe, un forage, un étage, un faciès, etc...) forment un nuage, dont les contours sont en rapport avec l'évolution diagénétique ou métamorphique subie.

De nombreux diagrammes de ce genre ont été construits dans les chapitres qui précèdent. Je renvoie le lecteur aux fig. 39, 43, 46, 48, 56, 62, 64, 66, 69, 71, 73, 75, 77, 80, 84 et 89.

La fig. 103 indique schématiquement les types de relation qu'on peut observer.

Type I Recristallisation diagénétique nulle à faible. Le bassin de Polignac (fig. 39) en fournit un exemple. Les illites ont une grande variabilité, qui reflète leurs conditions diverses de genèse et de sédimentation

Type II Recristallisation diagénétique faible à moyenne. C'est le cas des forages de Pierrefeu (fig. 56) et d'Adamswiller (fig. 64). Cette corrélation positive n'est pas fréquente.

Type III Recristallisation diagénétique forte. Les illites ont une cristallinité à la limite de l'anchizone, quelque soit leur constitution chimique. Exemple : les grès d'Oulougga (fig. 43).

Type IV Passage au métamorphisme : l'anchizone. Les illites riches en aluminium acquièrent plus rapidement que les autres une forte cristallinité. Ce n'est que pour un rapport I(002)/I(001) supérieur à environ 0,28, selon ESQUEVIN, que la cristallinité peut augmenter rapidement. Le forage de PA 1 (fig. 41) a donné un bon exemple de cette disposition, mais j'ai expliqué que la forte cristallinité résultait alors non pas d'un métamorphisme anchizonal, mais de la salinité élevée des solutions interstitielles. Un échantillonnage statistique des schistes paléozoïques et briovériens du Massif Armoricain place les uns dans l'anchizone, et les autres à la limite supérieure de l'épizone (fig. 104).

Type V Recristallisation métamorphique. La cristallinité est uniformément élevée. On verra au chapitre suivant (fig. 106) que la marge de variation du rapport 002/001 devient beaucoup plus forte. Je citerai ici la série de l'Adrar Zougar, toute entière à la limite supérieure de l'épizone (fig. 48).

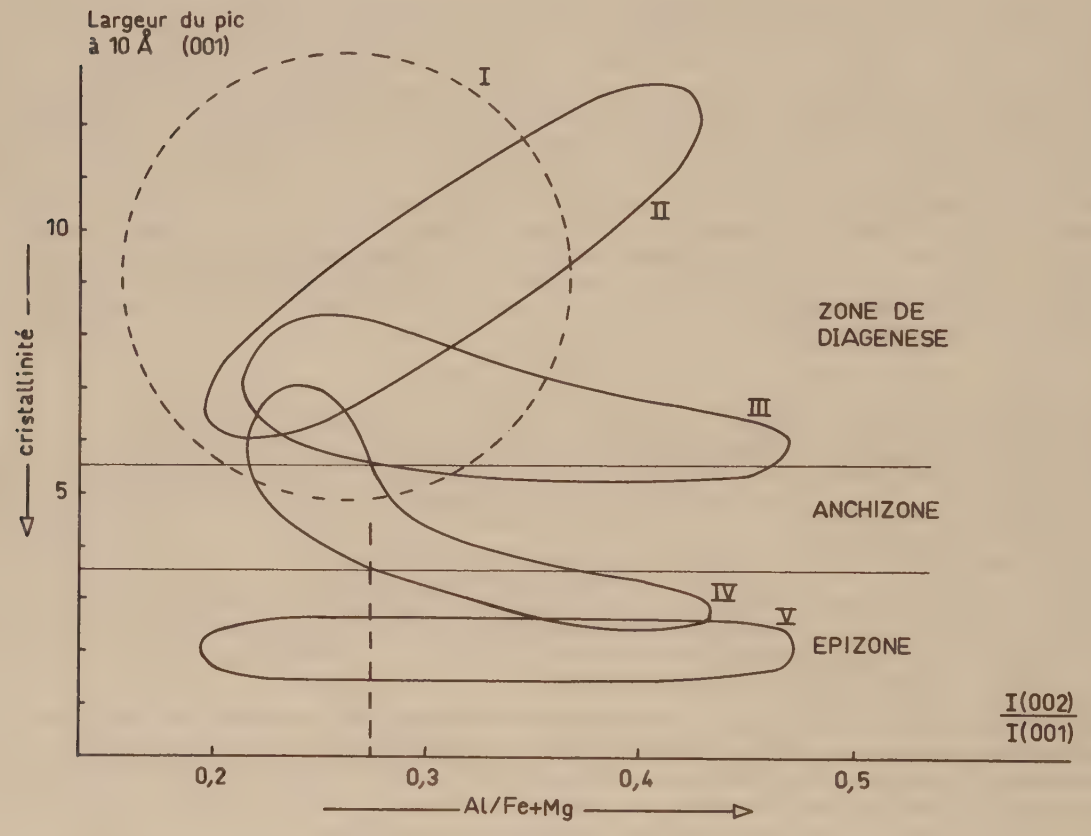


Fig. 103 - Différents types de relation entre la cristallinité de l'illite et le rapport d'intensité des pics (002) et (001), d'après ESQUEVIN (1969). Le rapport Al/Fe + Mg dans les octaèdres va croissant vers la droite.

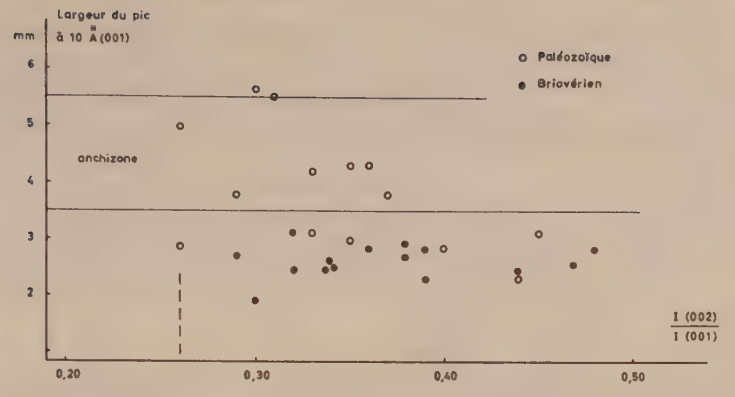


Fig. 104 - Massif Armoricain. Caractérisation des minéraux micacés selon la méthode d'ESQUEVIN (1969).

3 - L'évolution chimique des illites dans la diagenèse et le métamorphisme

En l'absence d'une série continue d'analyses chimiques d'illites pures à travers les zones profondes de la diagenèse, on est réduit à des hypothèses appuyées soit sur des raisonnements théoriques, soit sur les observations indirectes que je viens de rapporter. Toutefois, certaines mesures ont été faites dans ce mémoire qui donnent d'utiles indications sur la variation chimique des illites. Je les rappelle ici.

a) LOGBABA. La fraction argileuse voit sa teneur en potassium augmenter avec l'enfouissement, tandis que sa perte au feu diminue (voir p. 73 et tableau IX p. 75). Ces variations sont en rapport avec l'illitisation progressive des interstratifiés illite-montmorillonite, dont les espaces interfoliaires se garnissent de potassium, remplaçant molécules d'eau et cations échangeables. La mesure directe de la capacité d'échange cationique, qui passe de 36 à 10 meq/100 g, confirme cette évolution (fig. 18 et 19).

b) TERRES NOIRES. Une même variation de la capacité d'échange accompagne la recristallisation de l'illite. Elle passe ici de 30 à 6 meq/100 g (fig. 65).

Il est donc certain que l'agradation de l'illite provoque au niveau des espaces interfoliaires un échange d'eau et de cations divers contre des alcalins fixés, potassium et sodium. Mais l'intérieur des feuillets est lui aussi, sans doute, le siège de transformations importantes. Il est logique de penser que l'aluminium vient se mettre en position tétraédrique, car il est nécessaire que la charge du feuillet augmente, pour que puisse se faire le captage des alcalins interfoliaires. C'est l'étude des micas de l'épizone, au chapitre suivant, qui confirmera les grandes lignes de ces transformations cristallochimiques.

VI - CONTRIBUTION DE L'ILLITE A LA ZONEOGRAPHIE DE LA DIAGENESE

Les variations de tous ordres qu'on vient de passer en revue dans ce chapitre peuvent servir de jalons sur ce que J. de LAPPARENT a appelé le chemin des profondeurs. La figure 105 donne une vue très schématique des principaux critères de variation, et permet de mieux définir certaines zones que j'ai déjà tenté de caractériser (fig. 96, 99, et 100).

1 - La zone de sédimentation

Elle reçoit des illites issues de l'érosion des continents selon deux voies (MILLOT, 1964) : une voie simple, par érosion des roches sédimentaires, où l'illite abonde ; une voie complexe, par remaniement des alluvions, où l'illite est le produit de dégradation de phyllites préexistantes, biotites, séricites et chlorites etc... de toutes origines. Quoi qu'il en soit, les milieux de sédimentation héritent une population de minéraux argileux micacés dans des états de dégradation très divers. Des agradations peuvent s'exercer en milieu marin. Je les ai évoquées page 39. Elles engendrent des illites désordonnées de type 1Md.

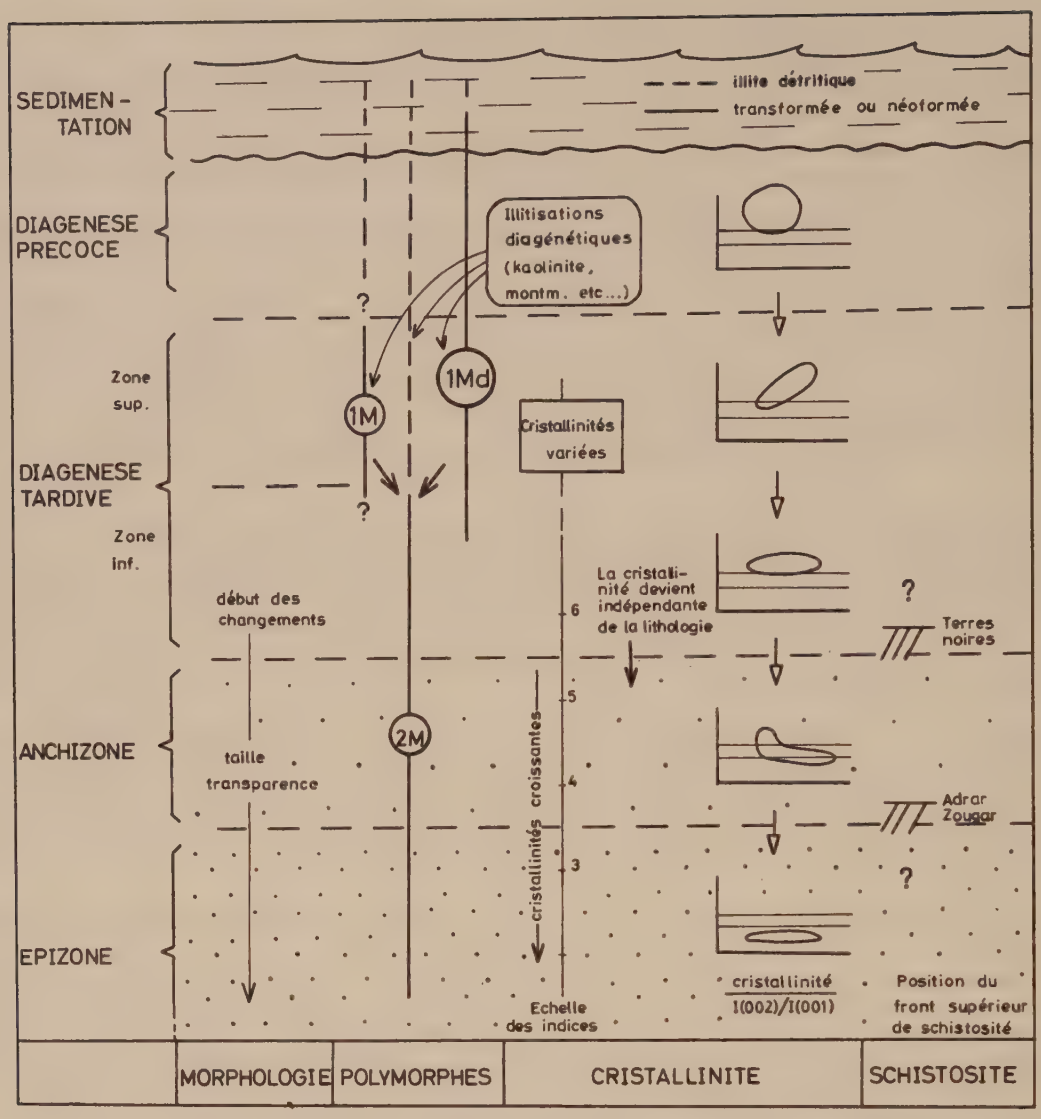


Fig. 105 - Variation de quelques paramètres de l'illite au cours des transformations diagénétiques et métamorphiques.

2 - La diagenèse précoce

Ce n'est pas le lieu de grandes transformations pour l'illite, car c'est le magnésium qui joue d'abord le premier rôle dans l'adsorption interfoliaire. L'illite garde son hétérogénéité d'origine.

3 - La diagenèse tardive

L'adsorption du potassium commence à se faire, et l'agradation de l'illite est favorisée par la compaction, qui chasse l'eau d'entre les feuillets, et par l'élévation de température, qui provoque la remise en ordre des réseaux. Deux zones peuvent être distinguées.

- Une zone supérieure, où toutes les variétés polymorphiques peuvent être représentées, et où la cristallinité est encore très variable.

- Une zone inférieure, où la structure 2M domine largement, et où la cristallinité devient assez forte et uniforme, quelque soit la lithologie.

4 - L'anchizone

Ce terme désigne la zone de transition vers l'épizone métamorphique.

- L'illite et la chlorite y sont les seuls phyllosilicates dans la fraction argileuse, quel que soit le type de roche : c'est le "faciès à illite et chlorite".

- L'illite y présente une agradation morphologique visible au microscope électronique.

- La seule variété polymorphique est 2M.

- La cristallinité est comprise entre les indices 3,5 et 5,5 (voir fig. 101), et les diagrammes "cristallinité/I(002) : I(001)" y ont une forme caractéristique. Le front supérieur de schistosité coïncide, en général, avec cette zone.

5 - L'épizone

Les illites y passent progressivement à des micas blancs, habituellement nommés séricites. Ils représentent un éventail très large de composition chimique le long de la série céladonite - phengite - muscovite, et peuvent être sodiques. Ils seront étudiés dans le chapitre suivant.

CHAPITRE V

LES MICAS AU SOMMET DE L'ÉPIZONE

On a vu dans le chapitre précédent que les minéraux argileux micacés, ou illites, subissaient dans les zones profondes de la diagenèse, dans l'anchizone, des transformations cristallochimiques qui les acheminaient progressivement vers d'authentiques micas. On va tenter maintenant de préciser les dernières phases de ces transformations, et de cerner la constitution chimique des micas de l'épizone métamorphique.

Par ailleurs, la présence de micas détritiques dans les sédiments pose le problème de la stabilité des micas dans les zones superficielles de l'écorce terrestre. J'ai pu montrer dans la série de Logbaba (p. 64) que biotites, et même muscovites, se dégradaient entièrement dans la diagenèse d'enfouissement. De très nombreux travaux sont consacrés à l'altération des micas. Leur analyse dépasserait les limites de ce mémoire. La minéralogie et la chimie des micas représente également une somme de connaissances qu'il n'est pas possible de rapporter en quelques pages.

Je me bornerai donc à présenter ici la naissance et le développement des micas à partir des minéraux argileux micacés formant le groupe de l'illite.

I - EVOLUTION DE QUELQUES PARAMETRES CRISTALLOGRAPHIQUES

1 - Variation de l'espacement basal $d(002)_{2M}$: muscovites paragonitiques

Les travaux de GUIDOTTI (1966) ont établi un rapport entre l'espacement basal des muscovites et leur teneur en sodium interfoliaire. Ils ont montré que les muscovites pouvaient accueillir jusqu'à 30 % de sodium, sans que se développe la paragonite elle-même. Il s'agit de muscovites paragonitiques, dont l'espacement basal, $d(002)_{2M'}$ est abaissé jusqu'à 9,93 Å (voir p. 181).

Ces muscovites partiellement sodiques ne sont pas exceptionnelles. Je les ai identifiées dans les marbres chloriteux de Vanoise (tableau XXVI, p. 180) et dans les schistes lustrés des Alpes cottiennes (tableaux XXXVII, XXXIX, p. 189 et 190, et fig. 85). Mais un contrôle par l'analyse chimique est nécessaire, car la teneur en sodium n'est pas le seul facteur influençant la dimension des micas selon l'axe c. On a vu que les micas de certains quartzites métamorphiques, à faible espacement basal, étaient cependant dépourvus de sodium (p. 186).

2 - Le développement de paragonite

L'examen systématique aux rayons X des fractions fines dans le sommet de l'épizone permet de constater que la paragonite n'est pas un minéral rare. Je l'ai déterminée dans les marbres chloriteux de Vanoise, où elle voisine avec des muscovites paragonitiques, dans les marbres en plaquettes au nord de Briançon, à Serre-Chevalier et dans le Queyras (p. 180). Je l'ai identifiée également dans les schistes lustrés du Val Molasco (p. 190).

La paragonite était peu connue des pétrographes des schistes cristallins, car il est pratiquement impossible de la distinguer de la muscovite en lame mince. Dans sa thèse sur les paragonites et les muscovites sodiques, HARDER (1956) fait le point de la question : les micaschistes à

paragonite sont rares. Or depuis que la diffraction des rayons X est appliquée couramment à la pétrographie, les observations se sont multipliées. Il faut citer les schistes à paragonites du Maine (GUIDOTTI,1966), du Vermont (ALBEE et CHODOS,1965), de Virginie (MILICI, GREENSBERG et JONES,1966), d'Alabama (NEATHERY,1965), du Massif Armoricain (VELDE 1966, SAGON,1967), des Alpes suisses (ZEN, ROSS et BEARTH,1964; KIENAST et VELDE,1968). KARPOVA (1966) décrit la paragonitisation de l'illite par les solutions de la diagenèse profonde. HINTERLECHNER-RAVNIK (1961) identifie la paragonite dans des marbres dolomitiques de Macédoine. Enfin, les conditions générales de stabilité de l'association muscovite-paragonite sont discutées par ZEN et ALBEE (1964) et GUIDOTTI (1968).

Cette revue montre assez l'importance de la paragonite dans l'épizone. La diffraction des rayons X a révélé cette importance, longtemps sous-estimée. Il faudra en tenir compte lors des bilans géochimiques.

3 - Cristallinité et rapport d'intensité des pics à 5 et 10 Å

La technique mise au point par ESQUEVIN (1969) a permis d'analyser assez finement les transformations diagénétiques et anchimétamorphiques des illites. Elle devient un outil moins sensible dans l'épizone, car la marge de variation de la cristallinité devient très faible. Toutefois le rapport I(002)/I(001) reste un indicateur valable de la composition chimique de la couche octaédrique.

Les fig. 48, 77, 80, 84, 89, 92 et 105 ont donné des exemples de populations micacées au sein de l'épizone. Certains d'entre eux ont été repris schématiquement sur la fig. 106. J'y ai joint les données concernant un important échantillonnage du Cambro-ordovicien des Asturies et de Galice (CAPDEVILA,1967; MATTE,1968). Cette figure appelle les remarques suivantes.

a) L'aire représentant chacune des séries caractérise à la fois le degré de recristallisation atteint et la composition chimique moyenne des micas.

b) Cette aire est unique tant qu'il ne se développe pas de biotite.

c) Les micas de l'épizone ont un rapport 002/001 toujours nettement inférieur à celui des muscovites des zones profondes. La raison en est que la couche octaédrique n'est pas purement alumineuse, mais partiellement occupée par du fer et du magnésium. Ces micas sont donc apparentés aux phengites.

d) Un métamorphisme croissant tend à déplacer les micas vers la droite, les rapprochant des muscovites. Les quartzites permiens en ont donné un bon exemple (fig. 80). Un autre exemple est offert par le métamorphisme de contact des schistes de Steige, dont les micas deviennent plus alumineux et mieux cristallisés au contact du granite (fig. 107).

e) Les micas atteignent rapidement, dès l'épizone, une cristallinité maximale, correspondant à une largeur de 1 mm dans les conditions d'enregistrement que j'utilise.

II - EVOLUTION CRISTALLOCHIMIQUE

Les chapitres qui précèdent ont montré que la diagenèse d'enfouissement réalisait inexorablement la chloritisation et l'illitisation du stock des minéraux argileux de tous ordres, incorporés aux sédiments par héritage, dégradation, agradation, néoformation, transformations diverses. J'ai pu montrer également que l'illite des zones profondes de la diagenèse s'appauvrissait en eau, s'enrichissait en alcalins, et voyait la charge de ses feuillets s'élever jusque vers 0,8. HOWER et MOWATT (1966) ont précisé que c'était au niveau de la couche tétraédrique que s'effectuait cette augmentation de charge, par tétracoordination de l'aluminium.

1 - Le point de départ : les illites

La fig. 108 situe dans un triangle céladonite - muscovite - pyrophyllite les illites des sédimentaires dont j'ai pu disposer. Le passage continu montmorillonites → interstratifiés I-M → illites y est bien visible. Il s'effectue, en gros, selon une parallèle à l'axe muscovite-pyrophyllite, c'est-à-dire à charge octaédrique constante, de 0,25 environ. Le mécanisme peut se décrire schématiquement comme suit.

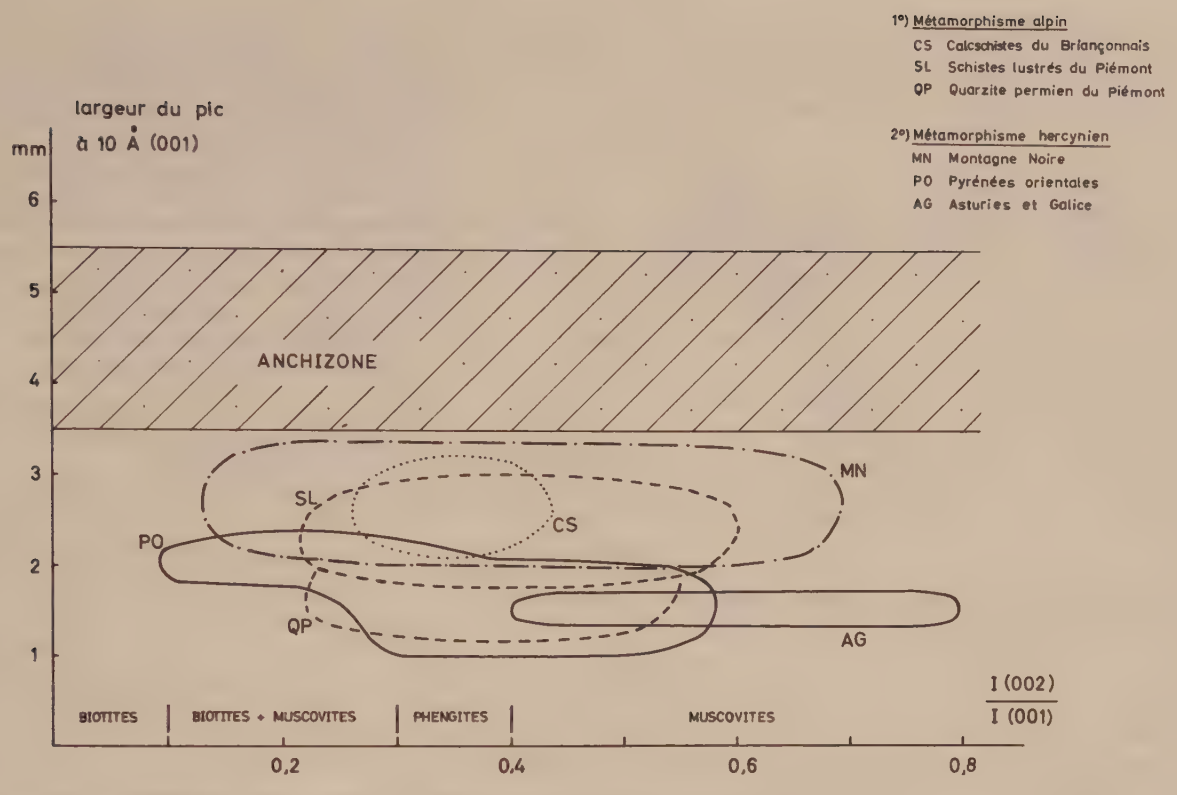


Fig. 106 - Distribution des micas de l'épizone dans quelques séries métamorphiques. (Postition des biotites, phengites et muscovites d'après ESQUEVIN (1969)).

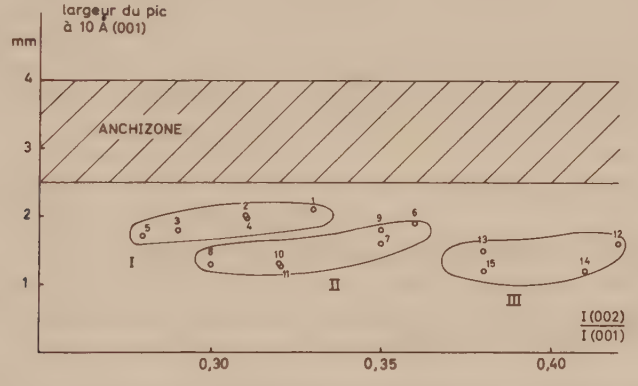


Fig. 107 - Schistes de Steige. Métamorphisme de contact du granite du Hohwald.
Les numéros indiquent, dans l'ordre, des échantillons allant des schistes intacts vers le granite.

- Al^{3+} quitte la couche octaédrique, où il est hexacoordonné, pour prendre place dans les tétraèdres voisins. La charge du feuillet augmente de ce fait.

- Mg^{2+} quitte l'espace interfoliaire, où les solutions de la diagenèse l'avaient placé, pour la couche octaédrique, dont il vient assurer l'équilibre rompu par le départ de l'aluminium. Il y a donc un remplacement 2Al-3Mg.

- Na^{+} et K^{+} viennent en position interfoliaire compenser l'augmentation de charge négative du feuillet.

Le bilan de l'opération est une incorporation de Mg, Na et K fournis par les solutions interstitielles, et un départ de Si. Celui-ci a été évoqué par TOWE (1962) comme source possible de silice dans certaines cimentations siliceuses de la diagenèse.

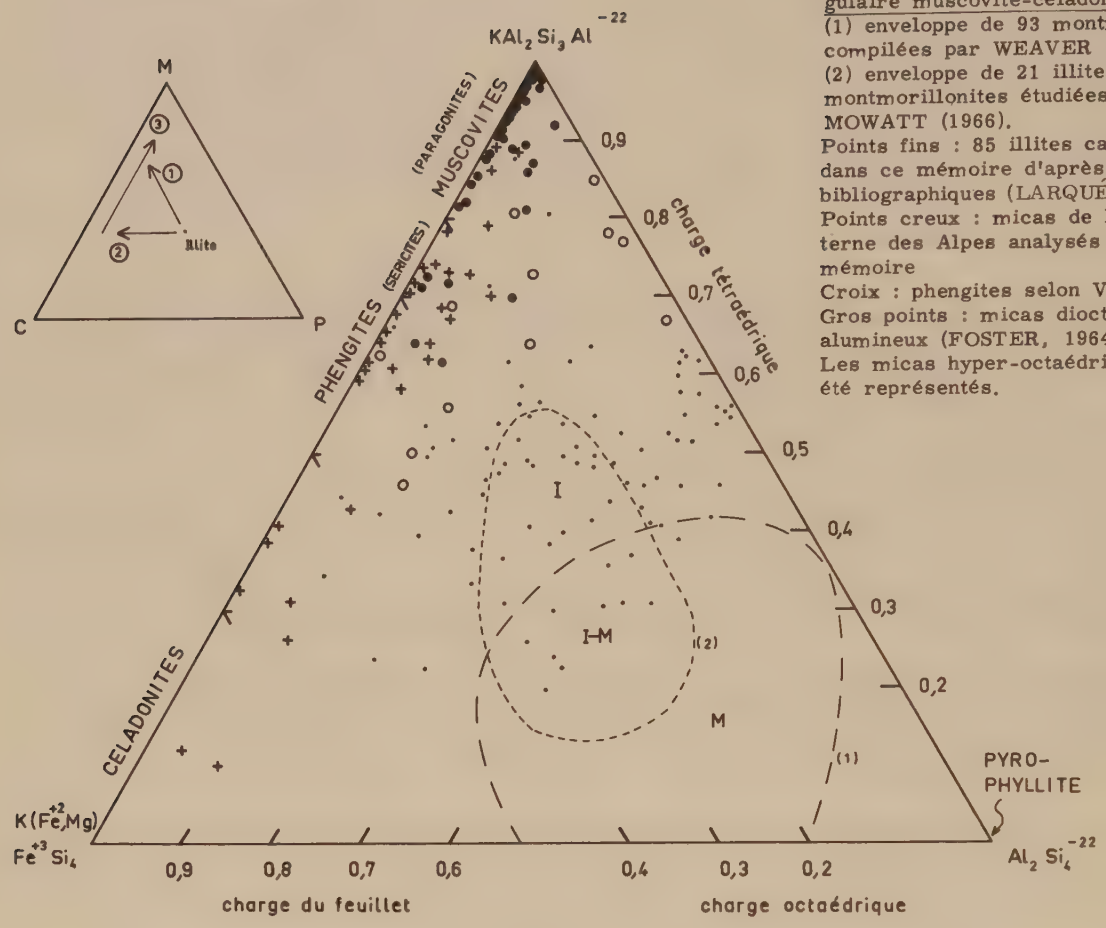


Fig. 108 - Evolution cristallochimique le long de l'itinéraire montmorillonite - illite - mica, dans le diagramme triangulaire muscovite-céladonite-pyrophyllite.
(1) enveloppe de 93 montmorillonites compilées par WEAVER (1968)
(2) enveloppe de 21 illites et illites-montmorillonites étudiées par HOWER et MOWATT (1966).
Points fins : 85 illites calculées dans ce mémoire d'après des données bibliographiques (LARQUÉ, inédit)
Points creux : micas de la zone interne des Alpes analysés dans ce mémoire
Croix : phengites selon VELDE (1965)
Gros points : micas dioctaédriques alumineux (FOSTER, 1964).
Les micas hyper-octaédriques n'ont pas été représentés.

2 - Le passage des illites de la diagenèse aux micas de l'épizone

Les principaux résultats de ce mémoire ont été reportés sur la fig. 108, mais le lecteur se reportera utilement aux fig. 81 et 85 qui donnent le détail de certaines variations. Les idées qui se dégagent de ces faits sont les suivantes.

a) Continuité des phénomènes : problèmes de nomenclature

Il apparaît clairement sur la fig. 108 qu'il n'y a pas de hiatus entre les différentes populations représentées. Les micas de l'épizone analysés dans ce mémoire sont en position intermédiaire entre les illites et les micas typiques à forte charge foliaire. Le groupe des phengites, tel qu'il a été analysé par VELDE (1965), a une dispersion considérable.

Dans ces conditions, il apparaît illusoire de donner des noms d'espèce minérale à des édifices cristallins qui constituent, non pas des formes d'équilibre définies, mais des populations aux limites imprécises.

Dans le domaine sédimentaire, le terme d'illite s'est avéré comme très commode pour désigner le vaste ensemble des minéraux argileux à 10 Å. Dans l'anchizone et l'épizone métamorphique, le terme de mica est le seul utilisable pour nommer des minéraux tels que ceux des schistes lustrés des Alpes. Chaque mica, individuellement, peut se rapprocher de types définis tels que muscovite, paragonite ou céladonite, mais à l'échelle d'une formation géologique, c'est une population de minéraux qu'on observera.

Le terme de phengite, quelque définition précise qu'on ait tenté de lui donner, désigne pour les géologues la population des micas voisins de celui où la charge du feuillet (0,95) est réalisée à la fois dans la couche octaédrique (0,30) et dans la couche tétraédrique (0,65). Par rapport à la muscovite, il y a donc moins d'aluminium, tant dans les tétraèdres que dans les octaèdres, et il y a du magnésium et du fer au niveau des octaèdres.

Quant au terme de séricite, ce n'est qu'un terme pétrographique, utilisé pour désigner les minéraux de très petite taille ayant les propriétés optiques des micas. Il est utilisé dans toutes sortes de circonstances (altération hydrothermale, diagenèse régressive, mylonites, schistes de l'épizone, etc...). Les quelques analyses chimiques de "séricite" dont on dispose donnent des points évidemment très dispersés dans un triangle tel que la fig. 108 (YODER et EUGSTER, 1955).

b) Les principaux itinéraires

L'évolution des illites vers les micas semble se faire le long de trois itinéraires schématisés sur la fig. 108 en haut à gauche.

I - Augmentation de la charge du feuillet

Celle-ci, qui est en moyenne de 0,7 pour les illites des sédiments va passer à 0,8 et 0,9. Cette augmentation de charge foliaire peut se faire de deux manières extrêmes.

① - A charge octaédrique constante : illite → muscovite

C'est la suite de l'évolution des interstratifiés I-M vers l'illite. Le groupe de l'illite se déplace vers la zone muscovite-phengite. Les micas des schistes lustrés occupent une position intermédiaire sur cet itinéraire.

② - A charge tétraédrique constante : illite → phengite

C'est au niveau de l'octaèdre seul que se réalisent les échanges Al-Mg qui ont pour effet d'augmenter la charge du feuillet. Les illites se déplacent vers la gauche, vers la zone phengite - céladonite.

II - La charge du feuillet reste constante

③ - Echange de charges entre octaèdres et tétraèdres : phengite → muscovite

C'est l'évolution mise en évidence par les micas des quartzites permiens alpins (fig. 81 et 82). Le jeu de l'aluminium, entrant dans le réseau avec les deux coordinances 4 et 6, provoque une augmentation de la charge tétraédrique, tandis que diminue la charge octaédrique.

EN CONCLUSION les résultats dont je dispose sur les micas au sommet de l'épizone me permettent d'avancer les propositons suivantes.

- Les micas de l'épizone font suite aux illites de la diagenèse profonde. La continuité est certaine entre ces deux populations.

- Les micas blancs de l'épizone, souvent nommés "séricites", sont très différents de la muscovite.

- Ils sont souvent partiellement ou totalement sodiques (muscovites paragonitiques et paragonites).

- Leur charge tétraédrique est toujours inférieure à 0,9 (1 pour la muscovite).

- Leur charge octaédrique est généralement élevée par substitution de fer et de magnésium à l'aluminium, alors qu'elle est nulle pour la muscovite. Cela apparente les micas de l'épizone au vaste ensemble des phengites.

- Le développement des micas dans l'épizone réalise des transformations des particules d'illites par réarrangement des ions au sein du réseau. Mais il réalise aussi une néoformation massive de mica par croissance des cristaux : une particule d'illite, aux dimensions du micron, représente bien peu de chose au coeur d'un mica d'un dixième de millimètre.

CHAPITRE VI

ÉVOLUTION DIAGÉNÉTIQUE ET MÉTAMORPHIQUE DES CHLORITES

I - INTRODUCTION AU GROUPE DES CHLORITES

Les chlorites sont reconnues et étudiées depuis un siècle et demi, mais leur identification dans les minéraux des argiles est récente. Elle date de l'application de la diffraction des rayons X à l'étude des roches sédimentaires argileuses.

La structure des chlorites, élucidée par MAUGUIN (1928, 1930) et PAULING (1930), a fait l'objet des exposés de BRINDLEY et ROBINSON (1951) et BRINDLEY (1961). Des précisions ont été acquises depuis lors sur le mode d'empilement (polymorphisme) des feuillets (BROWN et BAILEY 1962, 1963; SHIROZU et BAILEY, 1965; LISTER et BAILEY, 1967).

La composition chimique des chlorites est restée, jusqu'à l'utilisation des rayons X, le seul critère de classification. Or cette composition varie dans des proportions très importantes, comme l'ont montré les recherches de TSCHERMAK (1890-1891) et ORCEL (1927). De nombreux travaux d'ensemble sont venus ensuite apporter des retouches aux premières classifications, en utilisant conjointement les données cristallographiques, optiques, et chimiques. Les principales étapes sont marquées par les publications de WINCHELL (1936), ORCEL, CAILLÈRE et HÉNIN (1950), SERDYUCHENKO (1953), HEY (1954), NELSON et ROY (1954), ECKHARDT (1959), ALBEE (1962) et FOSTER (1962, 1964).

II - LES AGRADATIONS DIAGENETIQUES

Le chapitre sur les minéraux argileux interstratifiés a permis de décrire les principaux itinéraires selon lesquels les minéraux argileux dégradés de tous ordres s'acheminent vers les deux réseaux, stables en profondeur, de l'illite et de la chlorite. Je rappelle que ces minéraux dégradés ne représentent pas des types structuraux distincts, correspondant à des héritages particuliers, ou des modes d'altération bien tranchés. Ils représentent au contraire une population hétérogène, où tous les stades de la dégradation sont présents. Ils proviennent non seulement des profils d'altération, mais encore et surtout de l'érosion de séries sédimentaires, qui ont elles-mêmes subi dans leur histoire toutes sortes de dégradations et d'agradations.

La fixation du magnésium par les minéraux argileux dégradés à trois couches conduit à des interstratifications de type chlorite-montmorillonite, voire corrensite (p. 228), chlorite-vermiculite (p. 228) et chlorite. Cette évolution a été résumée p. 232 et fig. 100. Il reste maintenant à la poursuivre vers les zones plus profondes, et à caractériser les chlorites de la diagenèse d'enfouissement. Faute de pouvoir isoler les minéraux pour l'analyse chimique, on fera surtout appel à la diffraction des rayons X.

1 - Stabilité au chauffage

Le chauffage à 490°C pendant 4h, pratiqué systématiquement pour l'identification des minéraux argileux, respecte, en principe, le réseau des chlorites, tandis qu'il détruit celui de la kaolinite. En fait, les chlorites rencontrées dans les sédiments se montrent instables. Cette instabilité se lit dans la morphologie du pic (001), à 14 Å, qui, soit s'abaisse et s'élargit, soit se déplace vers

12 Å, formant un palier mal défini. Dans le premier cas, je parle de "chlorite instable au chauffage", dans le second cas d'"interstratifié désordonné chlorite-montmorillonite ou chlorite-vermiculite", selon que le minéral gonfle ou ne gonfle pas à l'éthylène-glycol.

J'ai décrit les chlorites-vermiculites dans les forages de Logbaba. J'ai noté l'instabilité au chauffage des chlorites dans les forages de Logbaba, de Pierrefeu et de Contres. La stabilité va croissant avec le degré de recristallisation diagénétique et métamorphique. A partir de l'anchizone, le chauffage a même pour effet d'accentuer les raies d'ordre impair, et en particulier la raie (001) à 14 Å (Adrar Zougar, calcschistes et schistes lustrés des Alpes, Montagne Noire, Pyrénées Orientales).

2 - Epaisseur du feuillet d(001) et aluminium tétracoordonné

BRINDLEY (1961), reprenant les travaux de nombreux auteurs, arrive à une corrélation linéaire assez bonne entre l'espacement basal et le rapport Al/Si dans les tétraèdres. La relation est la suivante :

$$d(001) = 14,55 - 0,29\ x$$

où x représente le nombre d'Al dans la formule générale

$$(Mg_{6-x-y}\ Fe_y\ Al_x)\ (Si_{4-x}\ Al_x)\ O_{10}\ (OH)_8$$

Il faut préciser que la corrélation n'est bonne que pour les chlorites dans lesquelles Fe^{3+} est absent, ou du moins inférieur à 0,4 Fe^{3+} dans le demi-maille, soit environ 4 % Fe_2O_3 dans l'analyse chimique.

Cette méthode m'a permis d'évaluer la valeur moyenne du remplacement tétraédrique dans quelques séries.

- $Si_{2.3}\ Al_{1.7}$ pour Adrar Zougar
- $Si_{2.6}\ Al_{1.4}$ pour Pierrefeu
- $Si_{2.7}\ Al_{1.3}$ pour le Briançonnais
- $Si_{2.4}\ Al_{1.6}$ pour la Vanoise
- $Si_{2.77}\ Al_{1.23}$ à $Si_{2.87}\ Al_{1.13}$ pour les Schistes Lustrés

On constate que la teneur en aluminium tétracoordonné est partout élevée. Aucune de ces chlorites ne s'inscrit dans la catégorie des pennines (fig. 88). L'absence de pennine a été notée également par GUITARD (1970) dans les Pyrénées Orientales.

3 - Intensité des raies 00*l* et teneur en fer et magnésium

BROWN (1955) ainsi que BRINDLEY et GILLERY (1956) ont établi que l'intensité relative des raies 00*l* des chlorites était en relation avec leur composition chimique. J'ai utilisé ces résultats pour évaluer les teneurs relatives en fer et magnésium des chlorites des calcschistres du Briançonnais (p. 178). J'ai pu montrer ainsi que ces chlorites étaient riches en fer, et que le rapport Fe/Mg diminuait entre la zone du Briançonnais et la Vanoise métamorphique. Inversement, les chlorites riches en magnésium ont un pic à 14 Å très développé. Ce type de chlorite est fréquent dans les argiles salifères du Trias (LUCAS, 1962). Je l'ai rencontré dans le Permo-trias de Contres (p. 151).

4 - d(060) : chlorites trioctaédriques et dioctaédriques

La grande majorité des chlorites est trioctaédrique, les ions bivalents étant Fe^{2+} et Mg^{2+}. La distance d(060) est alors très voisine de 1,54 Å, variant entre d'étroites limites en fonction de la teneur en Fe^{2+} (BRINDLEY, 1961). On a là d'ailleurs un autre moyen d'estimer la teneur en fer des chlorites.

Mais il s'est avéré que les chlorites pouvaient être dioctaédriques, l'ion trivalent étant essentiellement Al^{3+}. La distance d(060) devient alors voisine de 1,50 Å. La question est très compliquée, car le feuillet de chlorite comporte deux couches octaédriques, et peut être dioctaédrique pour l'une de ces couches et trioctaédrique pour l'autre. Il y a donc des chlorites di-trioctaédriques et di-dioctaédriques, sans compter les multiples variantes que peut entraîner l'interstratification. Le nom de sudoïte a été proposé par von ENGELHARDT, MÜLLER et KROMER (1962) pour désigner l'ensemble des chlorites dioctaédriques.

N'ayant pas eu l'occasion d'identifier ces minéraux dans les séries étudiées ici, je laisserai de côté ce problème complexe des chlorites alumineuses, renvoyant le lecteur aux mises au point récentes de SUDO et SATO (1966) pour les argiles hydrothermales, de RICH (1968) pour les argiles des sols, de MÜLLER (1963, 1967) pour les argiles des sédiments, d'EGGLESTON et BAILEY (1967) et VAN OOSTERWYCK-GASTUCHE et DELIENS (1968) pour la cristallographie. Il est vraisemblable que l'aluminium joue un rôle plus important qu'on ne le pensait dans les chlorites des sédiments. Il faudra en tenir compte lors des bilans géochimiques.

5 - Agradations expérimentales

Le traitement de minéraux argileux divers par des solutions magnésiennes engendre des chlorites. MILLOT (1964) a présenté une revue de ces expériences faites à température ordinaire. Les résultats rapportés dans ce mémoire (p. 71) sur les argiles de Logbaba ont permis de réaliser des interstratifiés chlorite-vermiculite à une température de 400°C. Le milieu réactionnel avait la composition chimique de l'eau de mer, c'est-à-dire qu'il était peu concentré en magnésium.

Il est clair que l'action de solutions magnésiennes sur des minéraux argileux divers, dans des conditions expérimentales diverses, permettra de réaliser toute la variété des minéraux chloriteux qu'offrent les sédiments.

III - LES CHLORITES DE L'EPIZONE

On sait qu'une diagenèse d'enfouissement poussée ne laisse subsister que deux types de minéraux argileux : l'illite et la chlorite. Ce "faciès à illite et chlorite", acquis par tous les sédiments dès la diagenèse profonde, passe aux "schistes à séricite et chlorite" de l'épizone, à travers une "anchizone" qu'on a pu définir par certains paramètres de l'illite. Les connaissances sur les chlorites sont très fragmentaires. Cela tient aux raisons suivantes.

- Les chlorites ont une marge de variation chimique beaucoup plus élevée que celle des illites.

- Elles présentent des diffractogrammes beaucoup moins reproductibles (granulométrie, hydratation, chevauchement avec la kaolinite, etc...).

- Il est extrêmement rare qu'elles soient le seul constituant de la fraction argileuse, de sorte qu'on ne possède pas d'analyse chimique de chlorite dans cette zone. L'illite, en revanche, est parfois seule.

Ces difficultés sont responsables du peu de données dont on dispose.

Je rappellerai d'abord celles qui ont été exposées dans la III° partie de ce mémoire.

1 - Résultats exposés dans ce mémoire

Les calcschistes de la zone briançonnaise

Les chlorites se situent autour des deux formules moyennes suivantes

Briançonnais $Mg_{1.2}\ Fe_{3.5}\ Al_{1.3}\ (Si_{2.7}\ Al_{1.3})\ O_{10}\ (OH)_8$

Vanoise $Mg_{1.9}\ Fe_{2.5}\ Al_{1.6}\ (Si_{2.4}\ Al_{1.6})\ O_{10}\ (OH)_8$

Elles sont donc assez riches en fer. Les chlorites des marbres de Vanoise présentent, par ailleurs, une teneur en aluminium particulièrement forte.

Les schistes lustrés de la zone piémontaise

Quatre chlorites des schistes lustrés on fait l'objet d'une analyse détaillée, à laquelle je renvoie le lecteur (p. 192 à 195, fig. 86 à 88). Je rappelle que parmi tous les paramètres cristallographiques et chimiques mesurés, les seuls qui aient pu être mis en relation avec l'intensité du métamorphisme sont

- l'augmentation du rapport Fe/Mg

- l'augmentation du nombre total de cations en position octaédrique.

2 - Données bibliographiques

Le groupe des chlorites est caractérisé par un type de réseau. Il s'agit de phyllosilicates constitués de feuillets T.O.T séparés par une couche octaédrique, l'ensemble ayant une épaisseur voisine de 14 Å. Les rayons X permettent donc de déterminer les chlorites avec sécurité. L'analyse chimique des minéraux ainsi attribués au groupe des chlorites a fait ressortir une très grande latitude dans la composition chimique. On s'explique alors la difficulté qu'éprouvaient les chercheurs de la fin du siècle dernier, et ceux du début de ce siècle, à classer les chlorites sur les seules données de leur composition chimique globale. Alors qu'aujourd'hui une chlorite peut être caractérisée par les paramètres de sa maille, l'intensité relative de ses raies, son comportement au chauffage, le mode d'empilement de ses feuillets etc... le seul critère d'identification était autrefois la composition pondérale en oxydes.

C'est ainsi que les premiers grands travaux d'ensemble sur les chlorites, cités au début de ce chapitre, ont cherché à établir une distinction entre "orthochlorites" et "leptochlorites".

Les orthochlorites étaient définies comme des solutions solides en toutes proportions des quatre termes :

$Mg_6\ Si_4\ O_{10}\ (OH)_8$ antigorite

$Fe_6\ Si_4\ O_{10}\ (OH)_8$ ferro-antigorite

$Mg_4\ Al_2\ Si_2\ Al_2\ O_{10}(OH)_8$ amésite

$Fe_4\ Al_2\ Si_2\ Al_2\ O_{10}(OH)_8$ daphnite

Les chlorites ayant une composition chimique différente de celle prévue par ce schéma étaient nommées leptochlorites.

On ne sera pas étonné d'apprendre que les chlorites des schistes cristallins sont des leptochlorites. Le jeu des substitutions isomorphiques au sein des réseaux, que les chapitres précédents nous ont rendus familiers, autorise une grande variété de composition chimique. Les échanges tétraédriques (Si-Al) et octaédrique (Al-Fe^{3+}, Fe^{2+}-Mg) s'y exercent largement.

Déjà la seule présence de Fe^{3+} écarte les chlorites des schistes cristallins du groupe des orthochlorites.

Cette division en orthochlorites et leptochlorites est un héritage des temps où seule la chimie permettait de classer les chlorites selon le principe des "solutions solides" entre minéraux extrêmes. Elle a perdu son intérêt depuis qu'il est possible de déterminer les structures, de faire de la cristallochimie, et non plus seulement de la chimie. Mais les études faisant intervenir à la fois la cristallographie et la chimie sont encore très peu nombreuses, de sorte que nos connaissances sur les chlorites de l'épizone sont très rudimentaires.

Les principaux résultats sont dûs à MIYASHIRO (1957, 13 analyses), ALBEE (1962, 17 analyses), BANNO (1964, 9 analyses), HORIKOSHI (1965, 6 analyses), KEPEZHINSKAS et SOBOLEV (1965, 46 analyses), CHATTERJEE (1966, 2 analyses de chlorites riches en Fe^{3+}), GUITARD (1970, 4 analyses). Il apparaît

- que ces chlorites se situent principalement dans les groupes des ripidolites et des brunsvigites (fig. 88),

- que leur composition chimique reflète celle de la roche qui les renferme,

- qu'aucun lien ne peut être établi avec certitude entre l'intensité du métamorphisme et la constitution chimique.

Le rapport Mg/Fe aurait tendance à diminuer, en certains cas, avec un métamorphisme croissant (ALBEE, 1962), tandis qu'il paraît augmenter en d'autres circonstances (IWASAKI, 1963). Les mesures présentées ici n'apportent pas d'élément décisif dans ce débat.

IV - CONCLUSION

Le peu de données dont on dispose sur la cristallochimie des chlorites sédimentaires ne permet que d'esquisser le cycle qu'elles parcourent.

Dans les manteaux d'altération elles sont en grande partie héritées, soit des rétromorphoses et diagenèses régressives ayant affecté les roches du socle, soit des diagenèses positives ayant développé illite et chlorite dans les roches sédimentaires.

Dans les bassins sédimentaires elles proviennent de l'érosion des profils d'altération, mais surtout de l'érosion des séries schisteuses, où la chlorite est un des constituants majeurs. Les agradations par le milieu marin peuvent engendrer des chlorites à partir de minéraux argileux à trois couches dégradés.

La diagenèse précoce est le milieu d'élection des chlorites, car le magnésium est abondant dans les solutions interstitielles. Les chlorites dégradées s'y cicatrisent, tandis que les montmorillonites peuvent se chloritiser en passant par la corrensite.

La diagenèse profonde voit les chlorites gagner en régularité et en stabilité. Elles sont seules présentes avec l'illite, réalisant le "faciès à illite et chlorite" de l'anchizone.

L'épizone est le domaine des chloritoschistes. Les chlorites constituent la principale phase minérale dans laquelle entrent le fer et le magnésium. Les relations de ces chlorites avec les micas phengitiques d'une part, et les biotites naissantes d'autre part sont certainement étroites. Elles sont mal connues.

Le relais de la chlorite par la biotite, à la frontière de la mésozone est un autre problème. Il appartient au métamorphisme et non à la diagenèse.

En définitive, les chlorites représentent une fraction très importante des phyllosilicates de la surface. Elles se montrent instables à deux moments bien différents :

- dans les milieux superficiels très lessivés
- dans des conditions de température et de pression plus élevées que celles de l'épizone.

CHAPITRE VII

LES MINÉRAUX ARGILEUX DANS LA DIAGENÈSE VUE D'ENSEMBLE SUR LA DIAGENÈSE DES SILICATES

I - INTRODUCTION

La III° partie de ce mémoire a présenté des études régionales. Les phénomènes de diagenèse y sont décrits dans leur ensemble. Un type d'évolution diagénétique se dessine, particulier à chacun des bassins étudiés. C'est là un premier palier de synthèse.

La IV° partie a été consacrée jusqu'ici à rassembler les observations précédentes pour dégager les lois d'évolution diagénétique de chacune des grandes familles de minéraux argileux. C'est là un deuxième palier de synthèse.

Un tel plan pose la question des échelles d'observation dans les sciences de la nature. Il est nécessaire de s'y arrêter un moment pour mieux situer les conclusions relatives à la diagenèse des sédiments que je présente dans ce dernier chapitre.

1 - Les échelles d'observation en géologie

Il est connu depuis longtemps, en logique des sciences, que la recherche doit s'effectuer à différents niveaux d'observation. WEGMANN (1951 et 1955) a appliqué cette notion à la géologie, en évoquant divers "ordres de grandeur" : atomes, minéraux, roches, affleurements, paysages, chaînes de montagnes. Chaque ordre de grandeur a ses méthodes de recherche et ses lois. Les lois découvertes à une échelle supérieure s'ajoutent à celles qui régissent le niveau inférieur. Ainsi la complexité augmente, par palier, d'une échelle d'observation à l'autre. C'est ce qui a été présenté par GLANGEAUD (1941 et 1955) sous le nom de "phénoménologie scalaire".

a) L'échelle de la lithosphère

C'est celle à laquelle on envisage le grand cycle géologique, le grand flux de matière qui parcourt les étapes d'altération, érosion, transport, sédimentation, diagenèse, métamorphisme et migmatisation. C'est à cette échelle que se dressent les grands bilans géochimiques. C'est à cette échelle qu'on réfléchira, à la fin de ce chapitre, sur la place occupée par les argiles dans l'évolution superficielle de la croûte terrestre.

b) L'échelle des massifs et des bassins

C'est celle que j'ai choisie pour exposer les faits d'observation et les résultats de laboratoire dans la III° partie de ce mémoire.

Le bassin crétacé du Cameroun a livré les traces d'une évolution diagénétique régulièrement croissante en profondeur. Le niveau de recristallisation atteint n'est pas très élevé : on est au seuil du faciès à illite et chlorite.

Les bassins paléozoïques sahariens ont été généralement affectés par une diagenèse d'enfouissement assez faible. Les sédiments sont riches en illite et chlorite détritiques, de sorte que les recristallisations diagénétiques sont difficiles à déceler. La cristallinité de l'illite a cependant permis de chiffrer les effets de l'enfouissement. La pyrophyllite s'est développée de façon massive dans certaines conditions. (1)

---

(1) Voir note infrapaginale p. 134

Le bassin oligocène de Camargue présente des minéraux argileux peu changés malgré la grande profondeur d'enfouissement. Le faciès à illite et chlorite n'est pas atteint. On a mis cette faible évolution sur le compte de l'âge relativement récent de la série et de la porosité très faible des roches dans leur ensemble.

Le bassin permien de Contres-Bourges a subi une recristallisation diagénétique importante, croissante avec la profondeur d'enfouissement. Les interstratifiés et l'illite marquent les étapes de cette évolution, qui conduit jusqu'au seuil de l'anchizone.

Le bassin jurassique des "terres noires" de la Durance a révélé des transformations des minéraux argileux selon deux gradients. Un gradient vertical, celui de la diagenèse d'enfouissement, un gradient horizontal, celui de la zone d'influence des phénomènes orogéniques et métamorphiques alpins. Le premier assure une recristallisation discrète, qui ne dépasse pas une diagenèse moyenne. Le second, beaucoup plus important, conduit jusqu'à l'anchizone.

Dans la zone interne des Alpes, le Paléozoïque des Vosges, du Massif Armoricain, de la Montagne Noire, des Pyrénées Orientales le sommet de l'épizone n'offre plus que deux réseaux de phyllosilicates : chlorites et micas. Leur constitution chimique offre une grande variation. C'est le terme intermédiaire entre l'infinie variété des minéraux argileux interstratifiés et la relative simplicité des muscovites et biotites de la mésozone.

c) L'échelle des roches

J'ai choisi d'étudier des séries principalement détritiques, schisteuses, argilo-gréseuses, pour tenter de réduire, sinon d'éliminer, la variable lithologique. En effet, un faciès assez monotone permet de mieux apprécier les effets de l'enfouissement sur une série verticale, et aussi de comparer ces effets d'une région à l'autre. Si l'on change de lithofaciès, le milieu va imposer aux minéraux de nouvelles compositions. Il faudrait envisager séparément la diagenèse des minéraux argileux dans les argiles, les pélites, les grès, les marnes, les calcaires, dans les roches ferrugineuses, organiques etc...

d) L'échelle des minéraux

C'est à l'échelle des minéraux que les lois apparaissent aujourd'hui le mieux. C'est celle que j'ai choisie comme deuxième palier de synthèse, après l'échelle régionale. Rassemblant les observations éparses dans les différents bassins étudiés, j'ai cherché les coïncidences et les divergences permettant de cerner les lois d'évolution de chacune des grandes familles de minéraux argileux. Les coupures sont un peu arbitraires entre les montmorillonites, les interstratifiés illite-montmorillonite, les illites et les micas, puisqu'il s'agit d'une transformation continue.

Cette échelle d'observation est précieuse. C'est elle qui permet de comprendre comment les réseaux se modifient peu à peu. C'est elle qui a révélé l'existence de transformations au sein des feuillets au cours de la sédimentation, et qui nous montre ici leur ampleur considérable dans la diagenèse profonde et le métamorphisme. Mais elle est impuissante à saisir les ressorts de cette évolution, car les minéraux ne sont jamais d'une seule sorte. Ceux-ci obéissent à un vaste échange d'ions à travers les réseaux, chaque état d'équilibre correspondant à un nouveau type de répartition ionique.

e) L'échelle des réseaux cristallins et des ions

Les atomes sont principalement ionisés à la surface du globe, soit en solution aqueuse, soit au sein des réseaux cristallins. Les transformations de la diagenèse et de l'épizone ne sont, en somme, qu'une vaste redistribution des ions entre les solutions interstitielles et les différentes phases minéralogiques. L'eau est vraisemblablement toujours présente dans les espaces intercristallins, et c'est elle qui assure l'échange des ions de particule à particule. En outre, au sein des réseaux, la réalité des migrations ioniques a été démontrée, tant dans l'altération superficielle (PAQUET,1969; TARDY,1969) que dans la diagenèse et l'épizone (ce mémoire) ; c'est là une sorte de transformation à l'état solide. J'exposerai plus loin les grandes lignes de ces échanges ioniques pour les minéraux argileux.

2 - A l'échelle des roches : la diagenèse des sédiments

Parmi les divers ordres de grandeur qu'on vient de passer en revue, certains ont été retenus (les bassins, les familles de minéraux argileux), d'autres seront envisagés dans la suite de

chapitre (les réseaux, les ions). Mais les minéraux forment rarement une phase unique dans les sédiments. Ils réagissent les uns sur les autres, échangent leur substance. L'explication complète d'une évolution diagénétique devrait donc tenir compte à la fois de tous les constituants d'un sédiment.

Les sédiments sont des systèmes hétérogènes, où trois phases principales peuvent être distinguées.

1 - Une solution aqueuse, toujours présente, de composition chimique très variée. C'est l'"eau connée" des sédiments récents, la "solution interstitielle" des sédiments anciens et des roches. Quantité d'anions et de cations s'y trouvent en solution. C'est le milieu réactionnel des transformations diagénétiques.

2 - Des matières organiques, pouvant constituer d'une partie importante de la roche. Elles sont complexes, faites de débris et de matières solubles et insolubles dans les solvants organiques.

3 - Des particules minérales. La matière minérale des sédiments est rarement amorphe ou colloïdale. Elle est presque toujours cristallisée en minéraux, qu'on peut répartir dans deux grands ensembles :

a) la silice et les silicates,

b) les minéraux non silicatés (carbonates, sulfates, sulfures, oxydes, hydroxydes, phosphates, halogénures, etc...).

Etudier la diagenèse des sédiments, c'est analyser l'interaction de ces trois phases, entre lesquelles existent des rapports étroits. La phase aqueuse, si mal connue encore, est l'intermédiaire obligatoire de tous les échanges entre minéraux. De plus, c'est à cause du mouvement dont elle est animée dans les niveaux poreux, que les sédiments ne forment pas un système chimiquement clos.

Une revue des connaissances sur les solutions interstitielles dans la diagenèse, et sur l'évolution des matières organiques, sortirait du cadre de ce mémoire. De même, la diagenèse des roches non silicatées a été délibérément négligée pour des raisons que j'ai exposées plus haut. C'est en fin de compte à l'histoire diagénétique des silicates que je vais m'arrêter maintenant.

II - L'EVOLUTION DIAGENETIQUE DE LA SILICE ET DES SILICATES NON ARGILEUX

Les minéraux argileux sont des phyllosilicates. Ils ont en outre ceci de particulier que leur taille est très faible, de l'ordre du micron ou de la fraction de micron. Cette petite taille n'est pas l'effet du hasard ou encore le résultat d'une fragmentation mécanique. C'est l'expression d'un désordre tel, au sein des réseaux, que ceux-ci ne peuvent s'accroître. Il y a donc un "statut argileux", qui confère aux minéraux des propriétés particulières, au premier rang desquelles se place l'échange cationique. Ces propriétés rendent les minéraux argileux très sensibles à toutes sortes de transformations, dans tous les milieux et, en particulier, dans le milieu diagénétique. Dans ces conditions, il est naturel d'envisager séparément l'évolution diagénétique des argiles.

Les minéraux siliceux et silicatés accompagnent les argiles dans les sédiments détritiques. Ils évoluent selon des lois propres. Mais il importe de connaître celles-ci pour comprendre les transformations des minéraux argileux, car ils participent, comme donneurs ou comme receveurs, aux échanges ioniques.

1 - Les roches siliceuses

Elles ont des origines diverses et complexes, certaines étant chimiques (cherts, chailles, silex, tables siliceuses, meulières etc...), d'autres biochimiques (gaizes, spongolithes, radiolarites, diatomites, lydiennes, phtanites etc...), d'autres enfin volcaniques (tufs, cinérites, verres, etc...).. Dans de nombreux cas, le silicification est secondaire, c'est-à-dire diagénétique. Elle conduit à l'opale, à la calcédoine, ou au quartz, selon les conditions de milieu. J'ai évoqué ces phénomènes à propos des limites de la diagenèse (p. 37). FAIRBRIDGE (1967) en présente une revue. MILLOT (1964) s'est attaché à décrire les silicifications superficielles, et leurs relations avec les néoformations argileuses.

Le jeu de la silice dans les altérations climatiques, dans la sédimentation continentale et océanique, et dans la diagenèse précoce est extrêmement complexe. En revanche, il se simplifie à l'extrême dans la diagenèse profonde : toutes les variétés de silice, amorphe ou cristalline, de quelqu'origine qu'elles soient, se transforment en quartz. La recristallisation en quartz des roches siliceuses anciennes et des verres volcaniques est générale en profondeur. Elle ne souffre pas d'exception, et le problème de la silice se ramène au problème du quartz.

2 - Le quartz

L'importance volumétrique du quartz dans les sédiments détritiques est considérable. Les séries que j'ai étudiées ici se sont montrées toujours riches en quartz très fin, de sorte qu'on peut considérer que toutes les transformations d'argiles que j'ai décrites se sont déroulées en présence d'un excès de quartz.

La morphologie des particules de quartz témoigne de leur relation d'équilibre avec la solution interstitielle, milieu réactionnel de la diagenèse. Quartz corrodés et quartz nourris sont les signes d'une demande ou d'un apport de silice. Les mouvements de silice n'ont d'ailleurs pas nécessairement une grande ampleur. On sait, par exemple, que la pression lithostatique dans les grès provoque une dissolution aux points de contact des grains, et une recristallisation dans les espaces intergranulaires. Ces phénomènes ont été analysés par SIEVER (1962) et DAPPLES (1967).

En considérant l'évolution diagénétique tardive des sédiments dans son ensemble, on est conduit à faire deux remarques d'intérêt général touchant le quartz.

1 - Dans les sédiments détritiques fins, tels que les pélites et siltstones argileux étudiés dans ce mémoire, les petits grains de quartz ont subi un remaniement complet dans la diagenèse profonde, l'anchizone et l'épizone. Ils ont été entièrement dissous et recristallisés sur place, selon des formes en relation avec les contraintes subies par la roche.

2 - La résultante des transformations diagénétiques des argiles est le remplacement progressif des minéraux à faible substitution tétraédrique par les micas et les chlorites. Le rapport Al/Si s'élève au sein des réseaux, ainsi que je l'ai démontré. Or il est raisonnable de penser que l'aluminium est resté constant au sein du sédiment, puisqu'il est peu capable de migrer avec les solutions, seuls éléments mobiles dans la diagenèse. Par conséquent, l'élévation du rapport Al/Si au sein des réseaux implique une libération de silice. La silice ainsi libérée a déjà été évoquée comme une des causes possibles de certaines silicifications diagénétiques d'argiles (TOWE, 1962). Elle est surtout bien observable au microscope dans les argilites ayant subi une recristallisation diagénétique poussée : le quartz tapisse les moindres anfractuosités, et parcourt la roche en multiples filonnets discordants.

En résumé, le rôle du quartz dans la diagenèse des roches argileuses se ramène aux trois points suivants :

- Le quartz est la seule forme de silice libre dans la diagenèse profonde et l'anchizone ;

- le quartz est toujours en excès dans les roches argileuses détritiques ;

- la diagenèse des minéraux argileux libère des quantités importantes de silice, qui recristallise en quartz dans les interstices de la roche.

3 - La muscovite

Une erreur assez répandue consiste à penser que les illites détritiques des sédiments sont issues, par fragmentation, des muscovites à l'affleurement sur les continents. C'est tout à fait inexact, pour plusieurs raisons, qui ont été développées au chapitre traitant de l'illite. Je rappelle les deux principales.

- La muscovite ne s'altère pas en illite. Elle n'engendre d'ailleurs pas de minéraux argileux par altération superficielle. Sous les climats tempérés, elle est stable ; sous les climats ferrallitisants, elle est totalement hydrolysée.

- Les illites ont une cristallochimie très éloignée de celle des muscovites.

L'inaltérabilité de la muscovite sous la plupart des climats explique sa fréquence dans les roches sédimentaires détritiques. Une fois piégées dans les sédiments, les lamelles de muscovite sont soumises à la diagenèse d'enfouissement. J'ai étudié leur comportement dans les forages de Logbaba, du bassin de Polignac, de Tindouf et de Camargue. Les conclusions auxquelles j'arrive sont les suivantes.

- La muscovite est généralement instable dans la diagenèse d'enfouissement. Elle subit au sein des grès une exfoliation, et se transforme en kaolinite, dickite ou chlorite. Dans les argiles compactes, les paillettes de muscovite gonflent et se chloritisent par lamelles alternantes mica-chlorite. L'altération est freinée par la présence de calcite.

- Les muscovites détritiques peuvent traverser sans changement la zone de diagenèse pour retrouver leur domaine de stabilité dans l'épizone.

- La diagenèse d'enfouissement est donc un milieu où la muscovite est à la limite de sa stabilité. Suivant les conditions locales, elle se dégrade selon un itinéraire voisin de celui de la biotite, ou bien elle demeure intacte, tout comme les minéraux lourds, capable, comme eux, de parcourir plusieurs cycles géologiques.

4 - Les ferromagnésiens

Les minéraux ferromagnésiens (biotites, amphiboles, pyroxènes, péridots) sont tous instables, à tous les échelons de la diagenèse. Leur sort commun est l'argilisation, le minéral argileux dominant étant la chlorite. La chloritisation des ferromagnésiens débute vigoureusement dans la diagenèse régressive, bien avant l'affleurement. Elle est sans doute assez discrète lors des phénomènes superficiels. Elle se poursuit par contre activement dans la diagenèse. Les roches pyroclastiques offrent d'innombrables exemples de cette choritisation diagénétique des ferromagnésiens.

Le sort de la biotite mérite d'être examiné à part car, en tant que phyllosilicate, ses relations avec les minéraux argileux sont particulièrement étroites. Quatre aspects en sont bien connus. Ce sont :

- la chloritisation de la biotite dans la diagenèse régressive, celle qu'on observe inévitablement en lame mince dans les roches dites fraîches, parce que prises en carrière ou en sondage ;

- la dégradation des biotites dans les sols, donnant naissance à toute une série de minéraux argileux simples et interstratifiés (MILLOT, 1964; TARDY, 1969) ;

- l'altération des biotites dans la sédimentogenèse, et ses relations avec la formation de la glauconite ;

- la dégradation des biotites dans la diagenèse d'enfouissement. Les biotites suivent alors deux itinéraires principaux : soit une décoloration, une exsudation du fer et une évolution semblable à celle de la muscovite ; soit une amorphisation progressive par perte des contours, des clivages, du pléochroïsme et de la biréfringence.

A la différence des muscovites, les biotites sont incapables de parcourir plusieurs cycles géologiques. Leur dégradation en argile intervient inévitablement à un moment quelconque du grand cycle : rétrodiagenèse, altération superficielle, sédimentation ou diagenèse.

5 - Feldspaths, feldspathoïdes, zéolites

Ces divers minéraux sont des tectosilicates. Ils ont, en outre, ceci de commun, qu'ils représentent les principales formes silicatées du sodium et du calcium. Ils sont connus surtout dans les parties profondes du cycle géologique, mais leur présence dans la zone de diagenèse est certaine. Nos connaissances sur leur répartition et leurs conditions de genèse sont encore très inégales. On peut cependant donner à leur sujet les indications générales qui suivent.

A - Les feldspaths

L'altérabilité des feldspaths dans les zones superficielles de l'écorce est bien connue. La genèse de phyllites à partir des feldspaths est d'ailleurs un problème loin d'être éclairci, mais la réalité de l'argilisation des feldspaths et son importance volumétrique ne sont plus à mettre en doute.

Dans l'évolution diagénétique des sédiments, les feldspaths hérités sont soumis, tout comme le quartz, à des hydrolyses ou des nourrissages, selon les conditions géochimiques locales. Ils peuvent encore participer à la genèse des minéraux argileux.

De plus, la néoformation complète de feldspath peut intervenir dès les premiers stades de la diagenèse (TOPKAYA, 1950). Il s'agit généralement d'albite non maclée, que seul un examen

approfondi permet de distinguer du quartz. Cette albite néoformée, diagénétique, passe donc inaperçue le plus souvent à l'observation microscopique. Mais la diffraction des rayons X révèle sa présence. Les nombreux diagrammes de poudres effectués sur les vieux schistes de l'anchizone m'ont montré que l'albite était régulièrement présente. Cette présence, discrète il est vrai, a une signification importante. Elle réalise une incorporation du sodium à la phase silicatée, aux côtés des allevardites, micas paragonitiques et zéolites.

B - Feldspathoïdes et zéolites

Ces deux groupes sont voisins : l'analcime a été rangée successivement dans l'un et l'autre. Ils renferment des minéraux très variés, grâce aux possibilités de substitution qu'offrent les réseaux.

La genèse des zéolites peut se faire à tous les stades de la diagenèse. Mais il faut signaler tout de suite que cette genèse, sans être exceptionnelle, n'en est pas moins rare. Il est significatif qu'aucun des deux mille échantillons étudiés dans ce mémoire n'ait livré de zéolite. Cependant, ces minéraux revêtent une importance particulière à deux moments de l'histoire sédimentaire.

1 - Zéolitisation des produits volcaniques. Les cendres et verres volcaniques peuvent évoluer en zéolites dans le milieu marin. PACQUET (1969) en a donné un exemple particulièrement démonstratif dans les grès à analcime du bassin du Niger. Il a montré, en outre, qu'une deuxième diagenèse s'était exercée par places, transformant cette analcime en minéraux argileux. Les zéolites apparaissent donc là comme une étape transitoire vers le statut argileux. Les zéolitisations diagénétiques sont connues de bien des façons. HAY (1966) en a donné une revue à laquelle je renvoie le lecteur.

2 - Le "faciès zéolitique". J'ai donné des indications (p. 36) sur ce "faciès", le premier des faciès métamorphiques. Il permet une zonéographie précise du sommet de l'épizone, grâce à la variété des zéolites et à leurs étroites limites de stabilité. Mais encore faut-il que les zéolites se développent, ce qui n'est pas généralement le cas. Pour établir une correspondance entre la zonéographie des séries avec et sans zéolites, KISCH (1969) a tenté un parallèle entre le faciès zéolitique, la minéralogie des argiles et la carbonification des particules charbonneuses. Mais le cadre qu'il propose est encore imprécis, car les séries où ces trois éléments ont pu être étudiés ensemble sont très peu nombreuses.

En fin de compte, les zéolites représentent un état transitoire de la matière silicatée, depuis la diagenèse précoce jusqu'à l'épizone. Comme telles, leurs relations avec les minéraux argileux sont étroites. Leur originalité réside dans leur faculté d'accueillir le sodium et le calcium, en attendant que ces ions soient utilisés pour la néoformation massive des épidotes, des amphiboles et des feldspaths.

6 - Les minéraux lourds

Pour être complet, il convient de citer encore, parmi les silicates non argileux des roches sédimentaires, ce qu'il est convenu d'appeler les "minéraux lourds". Bon nombre d'entre eux sont en effet des silicates. Leur dureté et leur inertie chimique les rendent insensibles aux variations de milieu. Ils peuvent parcourir plusieurs cycles géologiques sans subir d'autres dommages qu'un arrondissement des angles. Ils sont en cela diamétralement opposés aux minéraux argileux, fragiles et sensibles.

7 - Au terme de cette revue,

il apparaît que les relations entre silicates non argileux et silicates argileux dans la zone de diagenèse sont marquées par les principaux faits suivants.

- La présence de quartz joue un rôle négligeable dans la diagenèse des minéraux argileux, puisque celle-ci ne consomme pas de silice. Elle en libère au contraire des quantités importantes.

- Des silicates de la profondeur (feldspaths, ferromagnésiens) ayant échappé à l'altération continentale, et divers produits silicatés volcaniques peuvent se trouver mêlés aux sédiments. Ils sont généralement en déséquilibre avec le milieu diagénétique, qui les hydrolyse alors. Les produits de cette hydrolyse nourrissent les néoformations argileuses.

- La diagenèse peut favoriser le développement de tectosilicates divers (feldspaths, feldspathoïdes, zéolites, épidotes). Ces néoformations peuvent parfois prendre le pas sur les néoformations argileuses, et caractériser certaines évolutions diagénétiques. Elles incorporent Na et Ca à la phase alumino-silicatée, tandis que les minéraux argileux y fixent K, Fe et Mg.

III - L'EVOLUTION DIAGENETIQUE DES MINERAUX ARGILEUX

1 - Le schéma de MILLOT : dégradation-agradation, milieu lessivé-milieu confiné

a) La genèse des idées

Dès 1949, dans sa thèse (p. 290) MILLOT attirait l'attention sur le rôle de la concentration des cations dans les milieux de genèse. Les milieux aux solutions diluées, acides, étaient le résultat d'un "lessivage", tandis que les milieux concentrés étaient qualifiés de "basiques". Dans son ouvrage de 1964 (chap. X et XI) il expose les trois grands mécanismes de l'héritage, des transformations et de la néoformation, en s'appuyant sur un grand nombre d'observations. Les "transformations" sont analysées, et rapportées à deux grands mécanismes symétriques, la dégradation et l'agradation. Enfin les milieux dans lesquels se situent ces transformations se rattachent à deux grands types, les "milieux lessivés" et les "milieux confinés". Ainsi se présentent "deux grandes voies" pour l'évolution des silicates à la surface de l'écorce terrestre (MILLOT, 1967).

Les vues de MILLOT étaient, par certains côtés, des hypothèses de travail plus que des conclusions. Quelques points restaient obscurs ou douteux, tels que la réalité des échanges tétraédriques, la genèse des illites et chlorites dans l'altération hyposuperficielle, le passage des illites aux micas. La thèse de LUCAS (1962) avait apporté la preuve des transformations par agradation. Les thèses de PAQUET (1969) et TARDY (1969) démontrent les mécanismes minéralogiques et géochimiques de la dégradation par altération superficielle. Ce mémoire expose ceux de l'agradation par diagenèse et métamorphisme. La réalité des transformations cristallochimiques, au sein des réseaux d'argile, se confirme. Il apparaît, en outre, une symétrie frappante entre les deux itinéraires vers la surface et vers la profondeur.

Ainsi s'est bâti, en vingt ans, un schéma dont les mots clefs sont acide-basique (MILLOT 1949), héritage-transformation-néoformation, dégradation-agradation, milieu lessivé-milieu confiné (MILLOT, 1964, 1966, 1967).

b) Les deux grandes voies de l'évolution des silicates à la surface de l'écorce terrestre

Les silicates des roches cristallines de la profondeur sont instables en surface. Ils vont céder la place aux minéraux argileux, qui représentent la forme stable des silicates d'alumine dans les conditions de l'hydrosphère. La genèse des argiles, ainsi que leur évolution, sont commandées par la dynamique des eaux. Ruissellement, percolation, évaporation ont pour effet de diluer ou de concentrer les solutions. Il se crée ainsi deux types extrêmes : les milieux lessivés et les milieux confinés, étant bien entendu qu'un milieu peut être éventuellement confiné pour un élément, alors qu'il est lessivé pour les autres et vice versa.

A - En milieu lessivé

La zone inférieure d'altération ou zone de diagenèse régressive. C'est celle où se produit la séricitisation des feldspaths et la chloritisation des ferromagnésiens. Ramenés de la profondeur, les minéraux primaires s'élèvent jusqu'à la zone de diagenèse, où l'eau intervient à nouveau. Les minéraux qui apparaissent dans cette diagenèse régressive sont les mêmes que ceux qui se développent dans la diagenèse positive étudiée ici, c'est-à-dire ceux qui possèdent le réseau micacé (séricite, illite) et le réseau chloriteux (chlorites diverses). La matière première est fournie ici par les silicates de la profondeur, au lieu d'être fournie par les argiles des sédiments. Mais le résultat est le même.

La zone superficielle des altérations et des sols. L'hydrolyse des silicates est régie par les conditions climatiques et la position des nappes aquifères. Les minéraux phylliteux eux-mêmes sont dégradés (MILLOT et al., 1966; TARDY, 1969; PAQUET, 1966). Tous les ions des couches octaédriques peuvent gagner les espaces interfoliaires, y compris l'aluminium ; c'est un des mécanismes qui mènent aux minéraux Al. De plus l'aluminium, qui quitte la couche tétraédrique, peut être remplacé par du silicium issu soit du réseau soit de la solution interstitielle. On passe, en milieu plus lessivé, du domaine de la dégradation au domaine des néoformations, et l'on parvient à la kaolinite et à la gibbsite.

Au total, le milieu lessivé superficiel permet de parcourir une séquence dont la liste complète est la suivante : phyllosilicates divers → vermiculite → montmorillonite → minéraux Al → kaolinite → gibbsite.

Le lessivage est un vaste phénomène de soustraction, et l'élément soustracteur est l'eau superficielle qui baigne les profils.

B - En milieu confiné

Il s'agit des basses plaines continentales, où se logent les accumulations d'origine pédologiques, et de la plupart des bassins sédimentaires lacustres, lagunaires et marins, où la concentration ionique s'élève. Ils reçoivent des minéraux, formant trois lots distincts :

. les minéraux hérités, constituants inertes ;

. les minéraux dégradés, qui retrouveront en milieu confiné les ions nécessaires à leur agradation (voir fig. 109) ;

. les minéraux néoformés à partir des solutions (montmorillonites ferrifères, montmorillonites magnésiennes, attapulgites et sépiolites).

Ces trois lots peuvent se mêler en toutes proportions, selon la variété infinie des types de pédogenèse, ou de sédimentation, obtenus par confinement. Pour les minéraux, le confinement est un vaste phénomène d'addition, l'élément fournisseur d'ions étant la solution interstitielle (milieu pédologique, sédimentaire ou diagénétique).

C - Dynamique des ions : le rôle de l'aluminium

- En milieu lessivé l'aluminium, résiduel, pilote les néoformations. Il est hexacoordonné.

- En milieu confiné, l'abondance des cations hydrolysables (alcalins, alcalinoterreux, silice pro parte) leur donne le principal rôle dans les néoformations. L'aluminium, accessoire, est partiellement tétracoordonné, et sa tétracoordination croît avec le confinement.

- Le grand moteur de l'évolution des minéraux argileux est la dynamique des solutions. Celle-ci est sous la dépendance étroite des climats, qui règlent l'intensité des altérations, et de la tectonique, qui règle l'intensité des érosions. C'est finalement ce couple climat-tectonique qui fixe la nature des minéraux argileux en route vers les bassins sédimentaires.

Les minéraux argileux, alumino-silicates de la surface de l'écorce, sont assez sensibles pour prendre l'empreinte des milieux qu'ils ont traversés, et assez résistants pour la conserver. Ce sont donc de précieux témoins des évolutions pédologiques, sédimentaires et diagénétiques.

2 - Contribution des minéraux argileux à la zonéographie de la diagenèse

Le schéma qu'on vient d'exposer retrace les évolutions superficielles dans les manteaux d'altération et les bassins sédimentaires. Il indique seulement les grandes lignes des transformations en profondeur par diagenèse. Or les observations rapportées dans ce mémoire permettent de suivre dans le détail l'évolution diagénétique des minéraux argileux.

La diagenèse représente non pas un type particulier d'évolution, ou un mécanisme, mais une zone de l'écorce, ou encore un moment dans l'histoire d'un sédiment, ce qui revient au même. Elle peut être subdivisée en plusieurs secteurs contigus, aux limites imprécises, où les minéraux des argiles présentent une évolution continue que je vais résumer.

a - La diagenèse précoce

C'est celle qui concerne les sédiments récents, sitôt immobilisés sur le fond du bassin. Les minéraux argileux s'y trouvent, ou s'y développent, de plusieurs façons.

Par héritage : toutes sortes de minéraux peuvent être réunis par le jeu des phénomènes géodynamiques externes. La diversité peut être extrême. En gros ces minéraux reflètent

- les roches livrées à l'affleurement alentour,
- les altérations actuelles ou passées de ces roches,
- les aventures subies au cours du transport.

Par dégradation. Tous les minéraux argileux sont stables en milieu marin et a fortiori dans le milieu de la diagenèse précoce, généralement plus concentré. Les minéraux argileux introduits par héritage dans ce milieu n'y subiront donc aucune dégradation. Ils sont eux-mêmes les produits des dégradations qui se sont exercées sur le continent avant la sédimentation.

Par agradation. Les solutions interstitielles de la diagenèse sont toujours plus concentrées que les eaux continentales, et souvent même que les eaux marines. Il est donc naturel que les agradations s'y développent. Elles se sont d'ailleurs amorcées dans les estuaires et les bassins. Il y a deux voies principales (fig. 100).

- L'adsorption de Mg^{2+} construit des édifices interstratifiés désordonnés chlorite-montmorillonite, des corrensites et des chlorites.

- L'adsorption de K^{+} provoque une illitisation progressive des interstratifiés désordonnés illite-montmorillonite.

Par néoformation. Les néoformations dans la sédimentation et la diagenèse précoce peuvent être très importantes. Elles interviennent massivement dans deux cas particuliers :

- la genèse de montmorillonites dans certains milieux confinés lacustres ou marins,

- le déséquilibre éprouvé par les produits volcaniques mis en contact avec le milieu marin, engendrant tonstein et bentonites.

La diagenèse précoce réalise donc un milieu complexe, où toutes sortes de minéraux argileux peuvent se trouver en présence, au hasard de l'héritage. Agradations et néoformations y jouent un rôle important. Les limites en sont imprécises.

- La limite supérieure, l'interface eau-sédiment, dont j'ai signalé dans la I° partie de ce mémoire l'importance biochimique et physico-chimique, ne correspond à aucun hiatus dans l'évolution des minéraux argileux. Les agradations amorcées dans le milieu marin se poursuivent sans discontinuité dans la diagenèse. La genèse de corrensite (p. 228) a montré un bon exemple de telles transformations continues, de la sédimentogenèse à la diagenèse.

- La limite inférieure ne peut être située avec précision, car elle est définie comme le moment où le sédiment a perdu environ 50 % de ses eaux connées, et où débute la lithification. Cela veut dire que le milieu de la diagenèse est très proche du milieu sédimentaire qui lui a donné naissance. Les particules sont immobilisées, mais la solution interstitielle assure une grande mobilité aux substances dissoutes. C'est par elle que se font les concrétionnements, ségrégations, imprégnations, épigénies, etc...

b - La diagenèse moyenne

Il s'agit d'une zone où les sédiments, déjà compactés, ont gardé cependant une certaine porosité. Enfouis à des profondeurs qui ne sont pas excessives, ils peuvent alors être parcourus par des eaux circulantes de toutes origines : eaux connées, eaux océaniques d'infiltration, eaux météoriques, eaux juvéniles, migrations verticales, latérales, successives, etc...

Ce domaine est caractérisé par une intense circulation de l'eau dans les roches. Les minéraux argileux n'y subissent donc aucune déshydratation : kaolinite et montmorillonite y sont stables.

Les notions de confinement et de lessivage ne sont guère utilisables dans le milieu diagénétique. Je préfère leur substituer la notion de concentration. C'est la concentration en chacun des éléments majeurs dans la solution interstitielle, qui va piloter les dissolutions, transformations et néoformations.

En milieu siliceux, acide, se développe la kaolinite ou la dickite. Cette néoformation peut prendre une grande ampleur. J'en ai donné de multiples exemples qui en font un indicateur précis de recristallisation diagénétique (fig. 96). En effet, si kaolinite et dickite répondent toutes deux aux mêmes conditions géochimiques, elles formulent deux réponses différentes, correspondant à des conditions thermodynamiques différentes.

En milieu alcalin, riche en potassium et en magnésium, s'opère ou se poursuit l'élaboration de l'illite et de la chlorite par l'intermédiaire d'interstratifiés (fig. 100). La chimie des solutions n'est d'ailleurs pas seule en cause. J'ai montré que l'illitisation de la montmorillonite n'était pas aisée, tant qu'une compaction vigoureuse n'avait pas chassé l'une des deux couches d'eau interfoliaire.

Les transformations intervenant dans cette zone ont un caractère réversible. Un sédiment peut être parcouru successivement par des eaux de caractères géochimiques très différents, induisant des recristallisations très diverses. Il subira alors des diagenèses sucessives dont le travail de PACQUET (1969) a donné un bon exemple.

En résumé la "diagenèse moyenne" peut se caractériser ainsi en ce qui concerne les minéraux argileux :

- tous les types de réseaux peuvent s'y rencontrer ;

- la kaolinite peut y céder déjà la place à la dickite ;

- la déshydratation et l'illitisation de la montmorillonite y progressent ;

- la porosité est encore élevée, de sorte que les circulations d'eaux peuvent y être importantes ;

- ces circulations peuvent induire des transformations successives, sortes de diagenèse réversibles.

c - La diagenèse profonde ou tardive

Ces deux adjectifs peuvent être utilisés, selon que l'on souhaite situer les évènements dans l'espace ou dans le temps. C'est la diagenèse profonde qui a été surtout étudiée dans ce mémoire. Elle se signale par un certain nombre de caractères qui ont été analysées à l'occasion de chaque série régionale. Je les résumerai, en énonçant les propositions suivantes.

L'enfouissement important provoque une compaction intense, une expulsion de l'eau, une élévation de la température et de la pression, un jeu de dissolution et recristallisation des grains de quartz et de feldspaths en contact.

Le milieu devient strictement confiné, c'est-à-dire que tous les ions s'y trouvent concentrés. La compaction chasse une partie des solutions interstitielles. Celles qui restent se concentrent, de par le rôle de filtre osmotique joué par les argiles. Il y a là une différence essentielle avec la "diagenèse moyenne", où le jeu des circulations pouvait lessiver certains éléments et en concentrer d'autres.

Les transformations des minéraux argileux sont donc toujours des agradations. Celles-ci conduisent aux réseaux de l'illite et de la chlorite. Le développement de l'allevardite est assez fréquent.

Les montmorillonites sont absentes, illitisées ou chloritisées par déshydratation et adsorption d'ions (fig. 99).

La kaolinite est instable dans ce milieu confiné. En milieu acide, elle recristallise en dickite (fig. 96). En milieu basique, elle est détruite et nourrit les agradations d'illite et de chlorite.

L'illite présente des caractères qui permettent de chiffrer le degré de recristallisation diagénétique : transformation polymorphique 1Md → 2M, gain de cristallinité, corrélation cristallinité-composition chimique (fig. 105).

La nature des minéraux argileux devient uniforme et indépendante du contexte lithologique : on atteint le faciès à illite et chlorite.

Enfin, ces transformations de la diagenèse profonde ont un caractère irréversible, tant que les sédiments n'auront pas été placés dans les conditions de lessivage intense de l'altération superficielle.

d - L'anchizone

Cette zone de transition entre diagenèse et métamorphisme fait suite à la précédente, dont elle possède tous les caractères. Quelques paramètres précis concernant l'illite permettent cependant de la définir. Elle constitue ainsi un jalon commode sur la voie du métamorphisme d'enfouissement. Elle a été analysée dans le chapitre consacré à l'illite. Je résume ici tout ce qui la concerne.

C'est à WEAVER (1960), puis à KUBLER (1964), que revient l'initiative d'une définition par le moyen de l'illite de la zone intermédiaire entre diagenèse profonde et métamorphisme. KUBLER a introduit en géologie pétrolière les mots d'"anchimétamorphisme" et de "zone anchimétamorphique", utilisés en Allemagne depuis 1927 (voir fig. 2). Je lui préfère le terme plus simple d'"anchi-

zone", introduit par FISCHER en 1933, qui passe plus naturellement à celui d'"épizone" (GRUBENMANN, 1904-1906).

De nombreux travaux ont été faits en collaboration avec les laboratoires de recherches pétrolières de la S.N.P.A. (Pau) et de la C.F.P. (Bordeaux), pour progresser dans la connaissance de l'anchizone. L'expérience acquise, que je présente ici, n'est donc pas le fruit de mes seules observations. Cependant, un grand nombre de mesures présentées dans ce mémoire concernent précisément cette anchizone, dont je peux aujourd'hui donner la description suivante.

1 - Les minéraux argileux présents sont l'illite et la chlorite. La pyrophyllite peut s'observer.

2 - La minéralogie des argiles est devenue tout à fait indépendante du contexte lithologique.

3 - Les particules d'illite y subissent une agradation morphologique observable au microscope électronique : taille dépassant plusieurs microns, régularisation des contours, augmentation de la transparence, apparition des moirés.

4 - La seule variété polymorphique de l'illite est la variété 2M, la transformation 1Md → 2M s'étant déjà effectuée dans la diagenèse tardive.

5 - La cristallinité de l'illite est comprise entre les indices 5,5 et 3,5 dans l'échelle adoptée ici (voir fig. 101).

6 - Il y a une corrélation positive entre cristallinité et rapport d'intensité des pics à 5 et 10 angströms : la cristallinité est d'autant meilleure que le rapport de ces intensités est plus élevé, c'est-à-dire que l'illite est plus alumineuse. Cela donne à certains diagrammes une forme caractéristique (voir fig. 103 et 105).

Cette définition de l'anchizone est provisoire, malgré sa précision, car elle ne repose que sur les paramètres cristallographiques de l'illite. Elle devrait être complétée par une analyse semblable de ceux de la chlorite, par des données cristallochimiques, et par des observations microstructurales. C'est en effet au niveau de l'anchizone que se situe généralement le front supérieur de schistosité. Toutefois, telle qu'elle est définie, l'anchizone constitue un repère utile en direction des zones métamorphiques.

e - L'épizone métamorphique

A travers l'anchizone, le matériel argileux à illite et de chlorite perd peu à peu ses propriétés "argileuses". La taille grandit, les réseaux s'ordonnent, les capacités d'échange diminuent. On voit naître les séricitoschistes. J'ai rassemblé dans les chapitres consacrés aux micas et aux chlorites les observations faites sur ces minéraux dans l'épizone. Les connaissances acquises sur les micas sont beaucoup plus nombreuses que celles qui concernent les chlorites. Elles permettent de saisir les étapes d'une grande évolution cristallochimique.

La filiation continue entre les illites sédimentaires, les séricites et les muscovites de l'épizone est admise depuis longtemps par la plupart des chercheurs. On manquait cependant de données cristallochimiques précises, apportant la preuve de cette transformation. Les mesures faites ici sur les micas de l'épizone apportent justement les jalons nécessaires pour démontrer la réalité de ces évolutions minéralogiques. J'en résume les principaux points.

- Les micas de l'épizone font suite aux illites de la diagenèse profonde et de l'anchizone. La continuité est parfaite entre ces deux groupes, comme elle l'est entre montmorillonites, illites-montmorillonites et illites. La fig. 108 exprime cette continuité.

- Les micas de l'épizone, souvent désignés par le terme descriptif de "séricite", sont notablement différents des muscovites des zones plus profondes (fig. 108).

- Les micas de l'épizone diffèrent de la muscovite par les caractères suivants.

- La charge tétraédrique est toujours inférieure à 0,9 alors qu'elle est de 1 pour la muscovite,

- La charge octaédrique, nulle pour la muscovite, est généralement assez élevée, grâce à la substitution de fer et de magnésium à l'aluminium. Ces micas sont donc généralement des phengites.

- Les espaces interfoliaires peuvent se charger partiellement ou totalement en sodium, donnant naissance à des muscovites paragonitiques ou à des paragonites.

f - La diagenèse régressive

Il s'agit du phénomène par lequel des roches, ayant cristallisé en profondeur (métamorphisme, magmatisme), sont placées dans les conditions thermodynamiques et géochimiques de la diagenèse. C'est un trajet de bas en haut, alors que la diagenèse normale est un itinéraire de haut en bas. C'est pourquoi on la nomme diagenèse régressive, ou négative, ou rétro-diagenèse, ou encore épidiagenèse (FAIRBRIDGE, 1967).

La diagenèse profonde est le lieu où se développent massivement illite et chlorite. Il est donc naturel que la diagenèse régressive provoque l'illitisation et la chloritisation des silicates de la profondeur. Les pétrographes du socle connaissent bien les sériciti sations, damouritisations, pinitisations, chloritisations, ouralitisations, serpentinisations, etc... qui affectent les minéraux. Ces altérations ne sont pas en relation avec l'affleurement. Les conditions superficielles sont incapables d'engendrer la séricite et la chlorite. Elles contribuent au contraire à les dégrader. Il s'agit bien d'une altération profonde que j'appelle "diagenèse régressive".

Peu d'attention a été portée jusqu'ici à cette diagenèse. LAPPARENT (1909, 1923) l'a évoquée, lui donnant le nom de "cémentation", du terme utilisé en métallogénie. LELONG et MILLOT (1966) ont récemment attiré l'attention sur son importance dans la genèse de l'illite des profils pédologiques. Il est certain que la naissance des argiles à la surface de l'écorce débute bien avant la mise à l'affleurement. Elle commence par une illitisation et une chloritisation des silicates du socle (feldspaths et ferromagnésiens) dans un domaine thermodynamique et géochimique qui est celui de la diagenèse profonde : c'est le phénomène de la diagenèse régressive.

On vient de parcourir les différentes étapes de la diagenèse des sédiments, en présentant un catalogue des minéraux argileux qu'on peut y rencontrer. Il importe maintenant de discerner les mécanismes, selon lesquels ces minéraux se transforment ou se relayent, et l'influence du milieu géochimique sur cette évolution. On disposera alors des éléments nécessaires pour montrer de quelle manière les minéraux argileux participent au grand cycle géologique des silicates à la surface de l'écorce.

3 - Le jeu des remplacements isomorphiques dans les réseaux cristallins

Les dégradations et les agradations impliquent des mouvements d'ions qu'on a schématisés sur la fig. 109 en considérant le cas de l'agradation. Ces mouvements obéissent aux lois de la cristallochimie : le remplacement d'un ion par un autre ne peut se faire que dans la mesure où les rayons ioniques sont suffisamment voisins, et où l'équilibre des charges est assuré dans le réseau. La réalité de ces remplacements, dits isomorphiques, et leur importance capitale dans les transformations positives et négatives des minéraux argileux ne peuvent plus être mises en doute. J'en exposerai l'essentiel, en insistant sur ceux qui interviennent au cours de la diagenèse et du métamorphisme.

a) Les substitutions tétraédriques

Les micas ont des tétraèdres de formule $Si_3Al\ O_{10}$, les feldspaths Si_3AlO_8 à $Si_2Al_2O_8$, et les chlorites $Si_{2,5}Al_{1,5}O_{10}$. Les roches cristallines et cristallophylliennes livrées à l'altération présentent donc des tétraèdres oxygénés, où le nombre d'Al pour 4 tétraèdres est supérieur ou égal à 1. La dégradation des silicates dans l'altération superficielle modifie ce rapport le long de l'itinéraire qui conduit aux montmorillonites des sols. Celles-ci présentent un taux de substitution de Si par Al qui n'est plus que de 0,4 à 0,7.

Dans la diagenèse d'enfouissement, c'est l'opération symétrique qui se produit : Al regagne les tétraèdres (fig. 109). La fig. 108 a illustré très clairement cette progression de l'aluminium tétraédrique. Le nombre d'Al pour 4 tétraèdres est le même que celui de la charge tétraédrique. De 0,1 à 0,4 pour les montmorillonites, il passe à 0,5 pour les illites, et croît jusqu'à atteindre 0,9 dans l'anchizone et l'épizone.

Ce jeu symétrique dans les substitutions tétraédriques à la surface et en profondeur entraîne une variation symétrique dans la charge des feuillets. Ceux-ci se déchargent dans l'altération, perdent leurs cations alcalins interfoliaires, et l'eau peut pénétrer entre les feuillets. Dans la diagenèse, les feuillets se chargent, l'eau est chassée, les cations alcalins sont captés.

b) Les substitutions octaédriques

Si les changements dans les sites tétraédriques au cours du cycle superficiel ont été souvent mis en doute, le mouvement des ions dans la couche octaédrique est généralement admis.

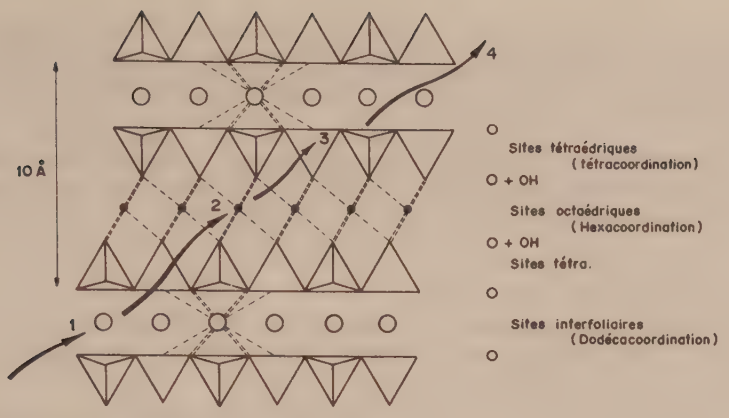


Fig. 109 - Schéma de la transformation des minéraux argileux T.O.T. au cours de la diagenèse et du métamorphisme (d'après MILLOT et al., 1966)
1. Des ions issus des solutions interstitielles viennent en position interfoliaire : K, Na, Fe, Mg.
2. Migration des ions vers les sites octaédriques : Fe, Mg, Al.
3. Passage des ions des sites octaédriques vers les sites tétraédriques : Al.
4. Expulsion de Si hors du réseau, vers les solutions intertitielles.

Les minéraux dioctaédriques, alumineux, comme la muscovite, sont très peu sensibles à l'altération chimique. Ce n'est que dans certaines conditions diagénétiques qu'ils se montrent instables, subissant une épigénie rapide en chlorite ou en kaolinite.

Les minéraux trioctaédriques, ferromagnésiens, comme la biotite, sont au contraire facilement altérés. Fe et Mg sont partiellement évacués et remplacés par Al.

Les dégradations superficielles engendrent des minéraux argileux à trois couches, où les octaèdres ont une composition très variable : Al, Fe^{3+}, Fe^{2+}, Mg s'y côtoient en toutes proportions. Les minéraux sont partiellement di et tri-octaédriques. Le déficit de charge octaédrique peut être élevé.

Les agradations diagénétiques réalisent un début de remise en ordre, les trioctaédriques évoluant vers les chlorites, les dioctaédriques vers les illites. Cette opération est très longue. Elle est loin d'être terminée au sommet de l'épizone. L'évolution des minéraux argileux à trois couches ne se fait pas dans deux phylums indépendants, celui des dioctaédriques et celui des trioctaédriques. Les dégradations superficielles tendent à généraliser le statut dioctaédrique par le maintien de l'aluminium, l'oxydation du fer ferreux et le lessivage du magnésium. La diagenèse va reconstituer sous forme de chlorite, par fixation de magnésium, une population trioctaédrique. Cette fixation pourra se faire sur n'importe quelle particule dégradée, quel que soit le minéral (di- ou tri-octaédrique) dont elle est issue. Les particules auront "perdu la mémoire" (MILLOT, 1967), au contraire de ces minéraux faiblement dégradés qui retrouvent, par une sorte de "mémoire" (GRIM et BRADLEY, 1955), leur ancienne structure dans le milieu marin.

Dans l'épizone, les chlorites présentent des octaèdres encore riches en aluminium et en fer ferrique. Elles peuvent former un groupe intermédiaire, dit des "chlorites oxydées", en direction des stilpnomélanes (CHATTERJEE, 1966). Les illites, puis les micas, gardent un déficit de charge octaédrique de 0,1 à 0,5. Leur garniture octaédrique les apparente aux muscovites ou aux phengites (voir fig. 108).

En définitive, la couche octaédrique est le lieu de substitutions très complexes, et l'opposition dioctaédrique-trioctaédrique est peu marquée pour les minéraux argileux à trois couches de la zone de diagenèse. Les dégradations de la surface ont tendance à compliquer le remplissage octaédrique, auquel participe l'aluminium issu des tétraèdres. Les agradations de la diagenèse tendent à une simplification, et celle-ci est loin d'être achevée au sommet de l'épizone.

c) Les échanges interfoliaires

Les espaces interfoliaires sont occupés par le potassium dans les micas. La dégradation de ceux-ci entraîne un lessivage du potassium, qui va de pair avec la perte de charge des feuillets. L'espace interfoliaire se trouve être ensuite le lieu de transit des cations issus de l'intérieur des feuillets. Les montmorillonites et vermiculites des sols ont des espaces interfoliaires occupés par des molécules d'eau et des cations échangeables.

La diagenèse d'enfouissement va provoquer un nouveau transit des ions dans l'espace interfoliaire, mais vers l'intérieur des feuillets cette fois (fig. 109). La compaction chassera l'eau, et les solutions interstitielles alcalines assureront la fermeture des feuillets, dont la charge aura augmentée.

Le comportement des espaces interfoliaires offre donc l'exemple d'une symétrie des mécanismes : ouverture ou baillement des feuillets à la surface, fermeture progressive en profondeur. Les mesures de cristallinité de l'illite en sont un témoin sensible.

4 - Ordre, désordre et croissance des cristaux

MILLOT (1964) a attiré l'attention sur la relation étroite qui existe entre le degré d'ordre d'un réseau et la taille des cristallites qu'il forme. Cette relation fait apparaître un nouvel élément de symétrie dans le cycle des phyllosilicates.

A la surface, dégradations et agradations engendrent des structures désordonnées, où les substitutions isomorphiques sont d'une grande variété. L'équilibre des charges ne peut se réaliser que dans des cristallites de très petite taille, et grâce à la présence de cations échangeables. Un tel équilibre est irréalisable dans des cristaux de plus grand format. La surface de l'écorce terrestre est caractérisée par le désordre et la petite taille.

En profondeur, l'agitation thermique favorise la recherche des équilibres à partir des états métastables. Les structures s'ordonnent. J'en ai développé deux exemples particulièrement démonstratifs : la genèse des interstratifiés réguliers corrensite et allevardite d'une part, la régularisation de l'illite d'autre part. Une structure ordonnée et équilibrée permet la croissance des cristaux. Celle-ci est manifeste dans l'épizone, où elle constitue même un phénomène de grande ampleur. A l'extrême, une structure parfaitement régulière est un motif simple qui peut se reproduire indéfiniment dans les trois dimensions de l'espace, tant que des ions sont disponibles pour le nourrir. La diagenèse et le début du métamorphisme sont caractérisés par des structures de plus en plus ordonnées et par une croissance massive des cristaux.

5 - La ventilation des ions au cours de la diagenèse

Le jeu des remplacements isomorphiques dans les réseaux argileux implique un vaste mouvement d'ions de minéraux à minéraux par l'intermédiaire des solutions interstitielles et au sein même des minéraux. Il se produit donc une redistribution, ou ventilation des ions entre les divers types de structure.

La géochimie des ions dans le cycle des minéraux argileux est connue dans ses grandes lignes (MILLOT, 1949, 1964). Les parties superficielles, continentales, de ce cycle ont fait l'objet des travaux de PAQUET (1969) et TARDY (1969). Je m'attacherai ici à analyser le comportement des ions dans les parties profondes du cycle, celles de la diagenèse et de l'épizone métamorphique.

a) Le silicium

J'ai montré que les recristallisations diagénétiques des minéraux argileux libéraient de la silice. Par conséquent, la présence ou l'absence de silice dans la phase non argileuse du sédiment sera sans effet sur la diagenèse des argiles. C'est bien ce qu'on observe dans la diagenèse profonde et l'anchizone, où les variations lithologiques n'ont plus d'écho sur la minéralogie des argiles (illite et chlorite).

Alors que dans les parties superficielles du cycle les minéraux argileux s'enrichissaient en silicium, ils s'appauvrissent dans les parties profondes. Le silicium libéré est utilisé à la fois pour nourrir la croissance des illites et chlorites, et pour alimenter les concentrations quartzeuses, amandes et filonnets, qui deviennent si abondantes dès qu'on franchit une certaine profondeur dans la zone schisteuse.

b) L'aluminium

LAPPARENT (1941) a remarqué que l'aluminium est tétracoordonné en profondeur, dans les feldspaths et les biotites, tandis qu'il est hexacoordonné en surface dans les argiles. Cette remarque a perdu un peu de sont intérêt lorsqu'on a su que les minéraux argileux offraient des quantités importantes d'illite et de chlorite, où Al présente les deux coordinances (MILLOT, 1949).

Aujourd'hui le schéma demeure. Il est même renforcé par le fait que, dans l'altération superficielle, le mouvement d'Al depuis tétraèdres vers les octaèdres est largement démontré. On

observe même une migration d'Al vers les espaces interfoliaires (minéraux Al). Dans la montmorillonite s.s., la kaolinite, et la gibbsite, Al est entièrement hexacoordonné.

Dans la diagenèse s'opère le mouvement inverse : l'aluminium abandonne peu à peu les sites octaédriques pour se tétracoordonner. Gibbsite, kaolinite et montmorillonite sont détruites. Dans les réseaux micacés, la tétracoordination progressive a pu être suivie à travers les illites-montmorillonites, les illites, puis les micas de l'épizone. Les mouvements de l'aluminium au cours de la diagenèse sont limités aux migrations intracristallines, mais leur réalité est démontrée.

Si le matériel sur lequel s'exerce la diagenèse est particulièrement riche en aluminium, les minéraux suivants pourront se développer :

- kaolinite puis dickite et nacrite en milieu acide,
- muscovite ou paragonite en milieu alcalin,
- pyrophyllite dans des conditions géochimiques encore imprécises,
- corindon dans le cas extrême des roches hyperalumineuses (métamorphisme des bauxites en émeris, LAPPARENT, 1935, 1946).

c) Le fer

Associé au magnésium et bivalent dans les ferromagnésiens des roches du socle, le fer va subir dans les minéraux argileux une histoire dont la symétrie est évidente.

En surface, le fer est en grande partie oxydé. Il prend la valence 3 et va nourrir les ferruginisations. Il entre aussi dans le réseau des argiles, fer ferrique des montmorillonites et des illites, fer ferreux des chlorites.

Dans la diagenèse, le fer est en grande partie réduit. Il prend la valence 2, mais cette opération est longue et tardive. Au départ les montmorillonites et illites sont ferrifères, les chlorites sont alumineuses. Les réseaux vont se régulariser peu à peu en échangeant Fe et Al. Cette opération est loin d'être terminée au sommet de l'épizone. Les micas y sont phengitiques, encore riches en fer. Les chlorites contiennent un fer qui est en grande partie ferrique (chlorites "oxydées"). Il faut attendre le développement de la biotite pour que le fer soit entièrement réduit dans le réseau des phyllosilicates.

La diagenèse des roches très riches en fer provoquera le développement massif de chlorites, elles-mêmes très ferrifères. Au seuil de l'épizone naîtront des phyllosilicates particuliers, chloritoïdes et stilpnomélanes.

d) Le magnésium

Compagnon du fer en profondeur, il est un des ions les plus hydrolysables en surface, après les alcalins. Les minéraux argileux des milieux superficiels lessivés sont donc pauvres en magnésium.

Dans la sédimentation et la diagenèse précoce, les minéraux dégradés vont retrouver le magnésium dans les solutions interstitielles confinées. On assiste au développement des montmorillonites magnésiennes, des attapulgites et des sépiolites, des corrensites et des chlorites.

Dans la diagenèse profonde et l'épizone, le magnésium des phyllosilicates n'est pas situé exclusivement dans les chlorites. Il se partage entre les réseaux des micas phengitiques et des chlorites ferrifères. Il faut attendre la mésozone pour que le magnésium bascule entièrement du côté des biotites.

Les argiles riches en magnésium (stevensites, attapulgites, sépiolites) évoluent rapidement vers la chlorite dans la diagenèse. On pourrait s'attendre à voir apparaître plus bas, dans l'anchizone et l'épizone, le phyllosilicate magnésien stable dans ces conditions : le talc. Or les talcschistes, dans l'épizone, sont aussi rares que les schistes à pyrophyllite. La rareté de ces deux minéraux isotypes pose un problème géochimique encore non résolu.

e) Le potassium

Les altérations superficielles l'extraient partiellement ou totalement des feldspaths et des micas, et l'évacuent dans les eaux continentales. J'ai montré comment les solutions diagénétiques réalisaient une fixation progressive du potassium sur les minéraux argileux dégradés à trois couches. C'est la longue évolution le long de l'itinéraire montmorillonite → illite-montmorillonite

→ illite → mica. Le potassium quitte les minéraux argileux dans les parties superficielles du cycle, pour les retrouver dans les parties profondes.

f) Le sodium

Le sodium est présent dans les plagioclases des roches du socle. Il est solubilisé dans l'altération superficielle, et gagne le réservoir océanique. Les minéraux des roches sédimentaires sont pauvres en sodium. Le développement massif d'albite et de plagioclase dans les zones de métamorphisme général est souvent interprété comme un "apport sodique", une "métasomatose" à grande échelle. Or il n'est généralement pas nécessaire de faire appel à un mécanisme d'une telle envergure. L'étude de la zone de diagenèse montre en effet qu'il n'y a pas de hiatus dans le cycle du sodium. Celui-ci accompagne les sédiments dans leur évolution en profondeur, et se trouve associé aux trois phases suivantes.

- Les solutions interstitielles de la diagenèse profonde sont riches en sodium. Les mesures en cours de forage rapportées dans ce mémoire en font foi. Ces solutions sont inconnues des pétrographes analysant des échantillons pris à l'affleurement, en carrière. Le sodium leur échappe donc presque entièrement.

- Les minéraux argileux micacés sont capables d'absorber une certaine quantité de sodium à côté du potassium. J'en ai apporté la preuve dans

  - l'extension et la composition chimique des allevardites,

  - le développement des muscovites sodiques et paragonites.

- L'albite se développe dès la zone de diagenèse profonde. La néoformation d'albite en milieu sédimentaire, signalée depuis longtemps par les pétrographes mais considérée comme exceptionnelle, se révèle être permanente, quoique discrète, dans la diagenèse profonde. Cette albite n'est pas discernable au microscope dans les faciès fins, mais les rayons X permettent de la déterminer avec sûreté.

L'étude de la diagenèse a donc permis de retrouver la trace du sodium dans l'évolution sédimentaire et métamorphique, et de montrer que les minéraux argileux jouent un rôle dans cette migration du sodium depuis les solutions océaniques jusqu'aux feldspaths de la profondeur.

Cette brève revue du sort des éléments majeurs dans la diagenèse des argiles fait apparaître un vaste échange d'éléments entre les minéraux. Il ne faut pas perdre de vue que le sédiment, dans sa totalité, participe à cet échange. Outre les minéraux argileux, sont présents la silice et les silicates non argileux, les minéraux non silicatés, et enfin les solutions interstitielles. Celles-ci jouent un rôle capital en constituant le milieu réactionnel. C'est en solution ionique que les éléments passent d'un minéral à l'autre. En outre, la migration des solutions dans les roches poreuses assure le transport des éléments sur de grandes distances, à l'échelle d'un bassin. C'est grâce à elles que les transformations diagénétiques ne sont pas strictement topochimiques.

VI - CONCLUSION GENERALE

L'étude de la diagenèse des minéraux argileux éclaire une partie du cycle géologique restée assez obscure jusqu'ici. Ce cycle est le grand flux de matière qui, arrachée aux continents par altération et érosion va rejoindre les bassins sédimentaires où la diagenèse, pendant des millions d'années, transformera en roches les sédiments, les livrera aux actions métamorphiques et magmatiques, avant que les hasards d'une orogenèse les remettent à l'affleurement.

Dans ce grand cycle, appelé encore "cycle géochimique", les argiles occupent une place singulière. Les minéraux argileux ont un statut particulier. De structure feuilletée, riches en eau, de petite taille, ils possèdent une sensibilité très grande à l'environnement géochimique et aux conditions thermodynamiques. Ils prennent donc l'empreinte des milieux qu'ils traversent, et sont, en cela, des témoins géologiques précieux.

La diagenèse exerce sur les minéraux argileux des actions multiples et complexes, qui ont fait l'objet de ce mémoire. On peut maintenant les considérer dans leur ensemble. On peut les comparer à celles qui s'exercent dans l'altération continentale. Il apparaît alors que les phénomènes sont complémentaires en bien des points. Il apparaît une symétrie de grande ampleur entre les parties superficielles et profondes du cycle géologique. J'en indiquerai les principaux éléments.

A la surface	En profondeur
1 - Micas et chlorites engendrent toutes sortes de minéraux argileux dans des états de dégradation divers.	1 - Tous les minéraux argileux sont transformés finalement en micas et chlorites.
2 - La dégradation se fait par migration des ions des tétraèdres vers les octaèdres, des octaèdres vers les interfoliaires, et des interfoliaires vers les solutions percolantes.	2 - L'agradation se fait par migration des ions des solutions interstitielles ver les espaces interfoliaires, les octaèdres et les tétraèdres.
3 - Les minéraux argileux s'enrichissent en silice.	3 - Les minéraux argileux libèrent de la silice.
4 - L'aluminium devient principalement hexacoordonné.	4 - L'aluminium repasse progressivement en position tétracoordonnée.
5 - L'hydrolyse des minéraux enrichit les solutions percolantes.	5 - Les solutions interstitielles nourissent la croissance des cristaux.
6 - Kaolinite et montmorillonite sont néoformées.	6 - Kaolinite et montmorillonite sont instables.

Enfin l'étude de la diagenèse des argiles a particulièrement bien illustré une des grandes lois des phénomènes naturels, celle de la continuité. Le mot de LEIBNIZ, "natura non fecit saltus", qui trouve sa plus belle expression dans l'évolution biologique, s'exprime aussi dans la lente évolution du cycle géologique. Les minéraux argileux y naissent dans la diagenèse régressive, s'y développent massivement dans l'altération continentale et la sédimentation, y meurent peu à peu dans la diagenèse et le métamorphisme. On observe un lent glissement des structures sur le chemin des profondeurs.

LISTE DES TRAVAUX CITÉS

ABRAMOV A. (1963) - Hydrophobization and flotation of sericite and chlorite in the presence of anion collectors. *Cvetnye Metally*, S.S.S.R., trad. Primary Sources, U.S.A., 4, 11, p. 16-19.

ALBEE A. (1962) - Relationships between the mineral association, chemical composition and physical properties of the chlorite series. *Amer. Min.*, 47, p. 851-870.

ALBEE A. et CHODOS A. (1965) - Microprobe analysis of interlayered muscovite and paragonite, Lincoln Mountain quadrangle, Vermont. *Prog. Annu. Meet.*, U.S.A., p. 2.

ALBISSIN M. d' (1962-1963) - Les traces de la déformation dans les roches calcaires. *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, 5, fasc. suppl., 173 p.

ALBRECHT P. (1969) - Constituants organiques de roches sédimentaires. Thèse Sci. Strasbourg, 175 p.

ALBRECHT P. et OURISSON G. (1969) - Diagenèse des hydrocarbures saturés dans une série sédimentaire épaisse (Douala, Cameroun). *Geochim. Cosmochim. Acta*, 33, p. 138-142.

ALPERN B. (1964) - Un exemple intéressant de houillification dans le bassin lorrain et ses prolongements. In : G.D. HOBSON et M.C. LOUIS (ed.), Advances in organic geochemistry, Pergamon Press, p. 129-146.

ALPERN B. (1967) - Mesure du pouvoir réflecteur des particules charbonneuses extraites des sondages du bassin de Polignac-Rhadamès (Sahara). Rapport inédit ERAP, CERCHAR.

ALPERN B. (1969) - Le pouvoir réflecteur des charbons français. *Ann. Soc. Géol. Nord*, Lille, 89, p. 143-166.

ALTHAUS E. et JOHANNES W. (1969) - Experimental metamorphism of NaCl bearing aqueous solutions by reaction with silicates. *Amer. Journ. Sci.*, 267, p. 87-98.

AMES L. et SAND L. (1958) - Factors effecting maximum hydrothermal stability in montmorillonites. *Amer. Min.*, 43, p. 641-648.

AMSTUTZ G. (1959) - Syngenese und Epigenese in Petrographie und Lagerstättenkunde. *Schweiz. Min. Petr. Mitt.*, 39, p. 1-84.

AMSTUTZ G., RAMDOHR P., EL BAZ F. et PARK W. (1964) - Diagenetic behaviour of sulphides. In : G.C. AMSTUTZ (ed.), Sedimentology and ore genesis. Elsevier, p. 65-90.

ANDREE K. (1909) - Über einige Vorkommen von Flussspat in Sedimenten, nebst Bemerkungen über Versteinerungsprozesse und Diagenese. *Tschermaks Min. Petr. Mitt.*, 28, p. 535-556.

ANDREE K. (1911) - Die Diagenese der Sedimente, ihre Beziehungen zur Sedimentbildung und Sedimentgeographie. *Geol. Rundsch.*, 2, p. 61-74 et 117-130.

ANDREE K. (1924) - Das Meer und seine Tätigkeit. In : W. SALOMON (ed.), Grundzüge der Geologie, Schweizerbart, Stuttgart, p. 346-533.

ARTRU P. (1967) - Le contrôle structural de la sédimentation argileuse dans les terres noires jurassiques, d'Embrun à la vallée du Rhône (France). *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 20, p. 211-222.

ARTRU P. (1968) - Répartition du bore et de quelques éléments-traces dans des bassins semi-euxiniques du miogéosynclinal alpin (terres noires jurassiques, France sud-est). *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 2, p. 83-100.

ARTRU P. et GAUTHIER J. (1968) - Evolution géochimique et diagénétique d'une série miogéosynclinale (Lias inférieur à Berriasien) d'après l'étude du sondage de Valvignères (France sud-est). *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 2, p. 101-116.

ARTRU P., DUNOYER de SEGONZAC G., COMBAZ A. et GIRAUD A. (1969) - Variations d'origine sédimentaire et évolution diagénétique des caractères palynologiques et géochimiques des Terres Noires jurassiques en direction de l'arc alpin (France, Sud-Est). *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 3, p. 357-376.

ATAMAN G. (1963) - Utilisation du spectromètre à lecture directe pour le dosage des éléments majeurs des roches sédimentaires et des silicates dans une grande gamme de concentrations. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 16, p. 233-240.

ATAMAN G. (1966) - Géochimie des minéraux argileux dans les bassins sédimentaires marins. Etude sur le bassin triasique du Jura. *Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 25, 237 p.

AUBOUIN J. (1959) - A propos d'un centenaire : les aventures de la notion de géosynclinal. *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, 2, p. 135-188.

AUBOUIN J. (1961) - Propos sur l'orogenèse. *Bull. Trim. B.R.G.M.* n° 52, p. 1-21.

AUTRAN A., GUITARD G. et RAGUIN E. (1963) - Carte géologique de la partie orientale des Pyrénées hercyniennes. 1 : 200 000. Edition provisoire pour le Congrès de l'AZOPRO.

BAILEY S., HURLEY P., FAIRBAIRN H. et PINSON W. (1962) - K-Ar dating of sedimentary illites polytypes. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 73, p. 1167-1170.

BAJOR M. et VAN DER WEIDE B. (1967) - Effets de la diagenèse sur la distribution des amino-acides dans les sédiments. *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 1, p. 173-186.

BANNO S. (1964) - Petrologic studies on Sanbagawa crystalline schists in the Bessi-Ino district, Central Shikoku, Japan. *Journ. Fac. Sci. Univ. Tokyo*, Sec. II, 15, p. 203-319.

BARBIER R., BLOCH J.P., DEBELMAS J., ELLENBERGER F., FABRE J., FEYS R., GIDON M., GOGUEL J., GUBLER Y., LANTEAUME M., LATREILLE M. et LEMOINE M. (1960-1963) - Problèmes paléogéographiques et structuraux dans les zones internes des Alpes occidentales entre Savoie et Méditerranée. Livre à la mémoire du Prof. Paul Fallot, II, *Soc. Géol. Fr.*, p. 331-377.

BATES T.F. (1947) - Investigation of the micaceous minerals in slate. *Amer. Min.*, 32, p. 625-636.

BATES T.F. (1964) - Geology and mineralogy of sedimentary kaolins of the Southeastern United States. A review. *Clays and Clay Min.*, (12th Nat. Conf., 1963), p. 177-194.

BAYLISS P., LOUGHNAN F.C. et STANDARD J.C. (1965) - Dickite in the Hawkesbury sandstone of the Sidney basin, Australia. *Amer. Min.*, 50, p. 418-426.

BEAVERS A.H. et MARSHALL C.E. (1951) - The cataphoresis of clay minerals and factors affecting their separation. *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, 15, p. 142-145.

BEAVERS A.H. et JONES R.L. (1966) - Elutriator for fractionating silt. *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, 30, p. 126-128.

BERNER R.A. (1966) - Chemical diagenesis of some modern carbonate sediments. *Amer. Journ. Sci.*, 264, p. 1-36.

BESNUS Y. (1967) - Contribution géochimique à l'étude du Trias des Causses (SE du Massif Central). Incidence sur les minéralisations Pb-Zn. Thèse 3ème cycle, Strasbourg, 46 p.

BESSON H., CAILLERE S. et HENIN M.S. (1966) - Comportement d'une montmorillonite en présence d'une solution magnésienne : formation d'une pseudochlorite stable. *Bull. Gr. Fr. Argiles*, 18, 13, p. 51-53.

BEUF S., BIJU-DUVAL B., STEVAUX J., KULBICKI G. (1966) - Ampleur des glaciations "siluriennes" au Sahara : leurs influences et leurs conséquences sur la sédimentation. *Rev. Inst. Fr. Pétrole*, 21, p. 363-381.

BEUF S., BENNACEF A.K., BIJU-DUVAL B., de CHARPAL O., GARIEL O. et ROGNON P. (1968) - Les grands ensembles sédimentaires du Paléozoïque inférieur du Sahara. *C.R. somm. Soc. Géol. Fr.*, 8, p. 260-262.

BEUGNIES A., GODFRIAUX I. et ROBASZYNSKI F. (1968) - Contribution à l'étude des phengites. *Bull. Soc. Belge Géol. Paléont. Hydrol.*, 77, p. 95-146.

BEUTELSPACHER H. et VAN DER MAREL H.W. (1968) - Atlas of electron microscopy of clay minerals and their admixtures. Elsevier, Amsterdam, 324 p.

BIGOTTE G., BONIFAS M. et MILLOT G. (1957) - Présence du talc dans les roches sédimentaires infracambriennes du bassin du Niari, Congo français (A.E.F.). *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 10, p. 3-7.

BLACKWELDER E. (1947) - Diagenesis and weathering. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 31, p. 500.

BOCHERENS R. et de BRION B. (1963) - Etat de la reconnaissance du bassin de Tindouf. Rapport inédit C.E.P., 123 p.

BONATTI E. et JOENSUU O. (1968) - Palygorskite from atlantic deep sea sediments. *Amer. Min.*, 53, p. 975-983.

BONHOMME M. et PREVOT L. (1968) - Application de la méthode rubidium-strontium à l'étude de l'âge radiométrique de quelques dépôts dévono-dinantiens du massif de la Bruche (Vosges du Nord). *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 21, p. 219-247.

BONIFAS M. (1959) - Contribution à l'étude géochimique de l'altération latéritique. *Mem. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 17, 159 p.

BORCHERT H. (1969) - Principles of oceanic salt deposition and metamorphism. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 80, p. 821-864.

BORDENAVE M., COMBAZ A. et GIRAUD A. (1966) - Influence de l'origine des matières organiques et de leur degré d'évolution sur les produits de pyrolyse du kérogène. IIId Intern. Meeting on Organic Geochemistry, London. Communication orale.

BORDOVSKIY O.K. (1965) - Accumulation and transformation of organic substances in marine sediments. *Marine Geol.*, 3, p. 3-114.

BORN A. (1930) - Über zonare Gliederung im höheren Bereich der Regionalmetamorphose. *Geol. Rundsch.*, 21, p. 1-14.

BOUCHINSKY G.I. (1954) - Lithologie du Crétacé de la dépression du Dniepr-Donetz. *Trudy Inst. Geol. Acad. Nauk S.S.S.R.*, 156, Serv Geol., n° 67.

BRACKETT R.N. et WILLIAMS J. (1891) - Newtonite and rectorite, two new minerals of the kaolinite group. *Amer. Journ. Sci.*, 42, p. 11-21.

BRADLEY W.F. (1945) - Diagnostic criteria for clay minerals. *Amer. Min.*, 30, p. 704-713.

BRADLEY W.F. (1950) - The alterning layer sequence of rectorite. *Amer. Min.*, 35, p. 590-595.

BRADLEY W.F. et GRIM R.E. (1961) - Mica clay minerals. In : G. BROWN (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner. Soc., London, p. 208-241.

BRADLEY W.F. (1961) - Diagenesis en sedimentos. *An. Edafol. Agrobiol. Esp.*, 20, 2, p. 99-105.

BRAMMAL A. (1921) - Reconstitution processes in shales, slates, and phyllites. *Min. Mag.*, 19, p. 211-225.

BRAMMAL A., LEECH J.G.C., BANNISTER F.A. (1937) - The paragenesis of cockeite and hydromuscovite associated with gold at Ogogau, Carmasthenshire. *Min. Mag.*, 24, p. 507-520.

BRINDLEY G.W. et ROBINSON K. (1946) - The structure of kaolinite. *Min. Mag.*, 27, p. 242-253.

BRINDLEY G.W., ROBINSON K. et GOODYEAR J. (1948) - X-ray studies of halloysite and metahalloysite. *Min. Mag.*, 28, p. 393-428.

BRINDLEY G.W. (1951) - X-ray diffraction by randomly displaced layer lattice minerals. In : G.W. BRINDLEY (ed.) X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner Soc., London, p. 285-305.

BRINDLEY G. W. (1951) - The kaolin minerals. in G. W. BRINDLEY (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner. Soc., London, p. 32-75.

BRINDLEY G. W. et YOUELL R. F. (1951) - Chemical determination of tetrahedral and octahedral aluminium. *Acta Cryst.*, 4, p. 495-496.

BRINDLEY G. W. et ROBINSON K. (1951) - The chlorite minerals. In : G. W. BRINDLEY (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner. Soc., London, p. 173-198.

BRINDLEY G. W. (1956) - Allevardite, a swelling double layer mica mineral. *Amer. Min.*, 41, p. 91-103.

BRINDLEY G. W. et GILLERY F. H. (1956) - X-ray identification of chlorite species. *Amer. Min.*, 41, p. 169-186.

BRINDLEY G. W. et NAKAHIRA M. (1958) - Structure of kaolinite. *Min. Mag.*, 31, p. 781-786.

BRINDLEY G. W. (1961) - Kaolin, serpentine and kindred minerals. In : G. BROWN (ed.), The X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner. Soc., London, p. 51-131.

BRINDLEY G. W. (1961) - Chlorite minerals. In : G. BROWN (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner. Soc., London, p. 242-296.

BRINDLEY G. W. et SANDALAKI Z. (1963) - Structure, composition and genesis of some long-spacing, mica-like minerals. *Amer. Min.*, 48, p. 138-149.

BRINKMANN R. (1961) - Abriss der Geologie t. I, 9° éd., Enke Verlag, Stuttgart, 280 p.

BROUSSE R. (1968) - Pétrologie. In : AUBOUIN J., BROUSSE R. et LEHMAN J. P., Précis de géologie. Dunod Université, Paris, p. 1-712.

BROWN G. et MAC EWAN D. M. C. (1951) - X-ray diffraction by structures with random interstratification. In G. W. BRINDLEY (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. Miner. Soc., London, p. 266-284.

BROWN G. et SMITHSON F. (1953) - Distribution of dickite in some british sandstones. *Nature*, 172, p. 317.

BROWN G. (1955) - Report of the clay mineral group subcommitee on nomenclature of clay minerals. *Clay Min. Bull.*, 2, p. 294-302.

BROWN G. (1955) - Intensities of 00*l* reflections of mica and chlorite-type structures. *Min. Mag.*, 30, p. 657-665.

BROWN B. E. et BAILEY S. W. (1962) - Chlorite polytypism : I. Regular and semi-random one-layer structures. *Amer. Min.*, 47, p. 819-850.

BROWN B. E. et BAILEY S. W. (1963) - Chlorite polytypism : II. Crystal structure of a one-layer Cr-chlorite. *Amer. Min.*, 48, p. 42-61.

BROWN G. et WEIR A. H. (1963) - The identity of rectorite and allevardite. Proc. 1st Intern. Clay Conf., Stockholm, 1, p. 27-35 ; 2, p. 87-90.

BRUNEAU J. (1960) - Révision des études sur la Camargue. Rapport inédit C. E. P.

BURST J. F. (1959) - Postdiagenetic clay mineral environmental relationship in the Gulf Coast Eocene. *Clays and Clay. Min.*, (6th Nat. Conf., 1957), p. 327-341.

BURST J. F. (1969) - Diagenesis of Gulf Coast clayey sediments, and its possible relation to petroleum migration. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 53, p. 73-93.

BUSH D. C., JENKINS R. E. et McCALEB S. B. (1966) - Separation of swelling clay minerals by a centrifugal method. *Clays and Clay Min.*, (14 Nat. Conf, 1965), p. 407-418.

BUSSON G. (1968) - Le Trias gréseux du nord-est de la plateforme saharienne (Algérie et Tunisie) à la lumière des données de sondages et de l'étude des affleurements. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 267, D, p. 2095-2098.

BYSTRÖM A. M. (1954) - Mineralogy of the ordovician bentonite beds at Kinnekulle (Sweden). *Sver. Geol. Unders. Serv.*, C, 540, 62 p.

BYSTRÖM A. M. (1957) - The clay minerals in the ordovician bentonite beds in Billingen, South West Sweden. *Geol. Fören. Förh.*, 79, p. 52-56.

CAILLERE S. (1934) - Observations sur la composition chimique des palygorskites. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 198, p. 1795-1797.

CAILLERE S. (1936) - Etude de quelques silicates magnésiens à faciès asbestiforme ou papyracé n'appartenant pas au groupe de l'antigorite. *Bull. Soc. Fr. Min.*, 59, p. 353-374.

CAILLERE S. et HENIN S. (1946) - Nouvelles observations sur le minéral d'Allevard. Type de palygorskite très alumineuse. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 222, p. 328-329.

CAILLERE S., HENIN S. et MERING J. (1947) - Passage expérimental de la montmorillonite à une phyllite à équidistance stable de 14 Å. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 224, p. 842-843.

CAILLERE S., HENIN S. et MERIAUX S. (1948) - Transformation expérimentale d'une montmorillonite en une phyllite à 10 Å type illite. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 226, p. 680-681.

CAILLERE S. et HENIN S. (1949) - Transformations of minerals of the montmorillonite family into 10 Å micas. *Min. Mag.*, 28, p. 606.

CAILLERE S. (1949) - Experimental formation of chlorites from montmorillonite. *Min. Mag.*, 28, p. 612.

CAILLERE S., MATHIEU-SICAUD A. et HENIN S. (1950) - Nouvel essai d'identification du minéral de la Table, près d'Allevard, l'allevardite. *Bull. Soc. Fr. Min.*, 73, p. 193-201.

CAPDEVILA R. (1967) - Extension du métamorphisme régional hercynien dans le nord-ouest de l'Espagne. *C.R. somm. Soc. Géol. Fr.*, p. 277-279.

CARRIGY M.A. et MELLON G.B. (1964) - Authigenic clay mineral cements in cretaceous and tertiary sandstones of Alberta. *Journ. Sedim. Petrol.*, 34, p. 461-472.

CASSAN J.P. et LUCAS J. (1966) - La diagenèse des grès argileux d'Hassi-Messaoud (Sahara) : silicification et dickitisation. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 19, p. 241-253.

CASTA L. (1969) - Nouvelle méthode de granulométrie d'un sédiment fin au moyen du "micrognulomètre". *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, 11, p. 141-146.

CAVET P. (1957) - Le Paléozoïque de la zone axiale des Pyrénées orientales françaises entre le Roussillon et l'Andorre. *Bull. Serv. Carte Géol. Fr.*, LV, 254, 216 p.

CAVET P. (1965) - Sur la stratigraphie du Paléozoïque du massif de l'Agly, au sud d'Estagel. *Mém. B.R.G.M.*, 33, p. 20-21.

CAYEUX L. (1897) - Contribution à l'étude micrographique des terrains sédimentaires. *Mém. Soc. Géol. Nord*, 4, 2, 589 p.

CAYEUX L. (1922) - Les minerais de fer oolithique de France. II. Minerais de fer secondaires. Imp. Nat., Paris, 1051 p.

CAYEUX L. (1941) - Causes anciennes et causes actuelles en géologie. Masson et Cie, Paris, 78 p.

CHAMLEY H. (1967) - Possibilité d'utilisation de la cristallinité d'un minéral argileux (illite) comme témoin climatique dans les sédiments. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 265, D, p. 184-187.

CHAMLEY H. (1968) - Sur le rôle de la fraction sédimentaire issue du continent comme indicateur climatique durant le Quaternaire. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 267, D, p. 1262-1265.

CHARM W.B. (1967) - Freeze drying as a rapid method of desagregating silts and clays for dry particle size analysis. *Journ. Sedim. Petrol.*, 37, p. 970-971.

CHATTERJEE N.D. (1966) - On the widespread occurence of oxidized chlorites in the Pennine zone of the western italian Alps. *Contr. Min. Petr.*, 12, p. 325-339.

CHENNAUX G. et BENARAB D. (1966) - Etude pétrographique du Siluro-dévonien du bassin de Polignac Tm 101, HF 1, HFa 1, BN 1. Rapport inédit S.N. Repal.

CHENNAUX G. et DUNOYER de SEGONZAC G. (1967) - Etude pétrographique de la pyrophyllite du Siluro-dévonien saharien. Répartition et origine. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 20, p. 195-210.

CHENNAUX G., DUNOYER de SEGONZAC G. et PETRACCO F. (1970) - Genèse de la pyrophyllite dans le Paléozoïque du Sahara occidental. *C.R. Acad. Sci.*, Paris, 270, D, p. 2405-2408.

CHEPILOV K.R., ERMOLOVA E.P. et ORLOVA N.A. (1959) - Epigenetic minerals as indicators of time arrival of petroleum into commercial sand reservoirs. *Dokl. Akad. Nauk S.S.S.R.*, 125, p. 1097-1099.

CHILINGAR G.V., BISSELL H.J. et WOLF K.H. (1967) - Diagenesis of carbonate rocks. In : G. LARSEN et G.V. CHILINGAR (ed.), Diagenesis of sediments, Elsevier, p. 179-322.

CHOUBERT G. (1952) - Histoire géologique du domaine de l'Anti-Atlas., I, 2° partie. *Notes et Mém. Serv. Géol.* Maroc, 100, p. 75-196.

CHOUBERT G. (1963) - Histoire géologique du Précambrien de l'Anti-Atlas, I. *Notes et Mém. Serv. Géol.* Maroc, 162, 352 p.

COLLET L.W. (1908) - Les dépôts marins. Doin, Paris, 325 p.

COMBAZ A. (1964) - Les palynofaciès. *Rev. de Micropal.*, 7, p. 205-218.

COOMBS D.S. (1954) - The nature and alteration of some triassic sediments from Southland, New-Zealand. *Roy. Soc. New-Zealand Trans.*, 82, p. 65-109.

COOMBS D.S. (1961) - Some recent work on the lower grades of metamorphism. *The Australian Journ. Sci.*, 24, p. 203-215.

CORRENS C.W. (1939) - Die Sedimentgesteine. In : BARTH T.F.W., CORRENS C.W. et ESKOLA P., Die Entstehung der Gesteine. Springer, Berlin, p. 116-262.

CORRENS C.W. (1948) - Problème der Sedimentpetrographie. *Zeitschr. Deutsch. Geol. Ges.*, 100, p. 158-163.

CORRENS C.W. (1949) - Einführung in die Mineralogie, Kristallographie und Petrographie. Springer, Berlin, 414 p.

CORRENS C.W. (1950) - Zur Geochemie der Diagenese. I. Das Verhalten von $CaCO_3$ und SiO_2 *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1, p. 49-54.

CORRENS C.W. (1967) - Diagenese und Fossilisation. In : R. BRINKMANN, Lehrbuch der allgemeinen Geologie, Bd III, Enke, Stuttgart, p. 171-213.

C.R.E.P.S. (1963) - Le bassin de Polignac, in : Aperçus sur les progrès de la géologie saharienne. *Bull. Ass. Fr. Techn. Pétrole*, Num. Spéc.

DAPPLES E. C. (1959) - The behaviour of silica in diagenesis. *Soc. Econ. Pal. Miner. Spec. Publ.*, 7, p. 36-54.

DAPPLES E.C. (1962) - Stages of diagenesis in the development of sandstones. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 73, p. 913-934.

DAPPLES E.C. (1967) - Silica as an agent in diagenesis. In : G. LARSEN et G.V. CHILINGAR (ed.), Diagenesis of sediments. Elsevier, p. 323-342.

DAPPLES E.C. (1967) - Diagenesis of sandstones. In : G. LARSEN et G.V. CHILINGAR (ed.), Diagenesis of sediments. Elsevier, p. 91-126.

DEBYSER J. (1952) - Variation du pH dans l'épaisseur d'une vase fluvio-marine. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 234, p. 741-743.

DEBYSER J. (1952) - Le pH de la pellicule superficielle d'une vase fluvio-marine. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 234, p. 864-866.

DEBYSER J. (1954) - La sédimentation actuelle et la recherche du pétrole. *Rev. Inst. Fr. Pétrole*, IX, p. 543-561.

DEBYSER J. (1961) - Contribution à l'étude géochimique des vases marines. *Publ. Inst. Fr. Pétrole*, Réf. 6005, 249 p.

DEBYSER J. et al. (1962 à 1967) - Recherches sédimentologiques. *Publications de l'Inst. Fr. Pétrole.*

DEBYSER J., de CHARPAL O. et MERABET O. (1965) - Sur le caractère glaciaire de la sédimentation de l'unité IV au Sahara central. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 261, p. 5575-5576.

DEER W.A., HOWIE R.A. et ZUSSMAN J. (1962) - Rock forming minerals. Longmans, London, 5 volumes.

DEGENS E. T. (1964) - Über biogeochemische Umsetzungen im Frühstadium der Diagenese. 6ème Congr. Intern. Sedim., 1, p. 83-92.

DEGENS E. T. (1965) - Geochemistry of sediments. Prentice Hall, New-Jersey, 342 p.

DELFAUD J. et GAUTHIER J. (1968) - Contribution à la connaissance de l'environnement des dépôts carbonatés de plateforme. Caractères géochimiques et sédimentologiques du Jurassique nord-aquitanien. *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 2, p. 347-384.

DEMANGEON P. (1959) - Contribution à l'étude de la sédimentation détritique dans le Bas-Languedoc pendant l'ère tertiaire. *Naturalia Monspeliensa, sér. géol*, Mém. 5, 394 p.

DEMANGEON P., GLAÇON J. et MATTAUER M. (1962) - Nouvelles données sur la paléogéographie de l'Oligocène dans le Languedoc. *C.R. Soc. Géol. Fr.*, 7, p. 209-210.

DERIBERE M. (1943) - Le minéral papyracé de la Table (Savoie). *Bull. Soc. Fr. Min.*, 66, p. 222-237.

DEVERIN L. (1924) - L'étude lithologique des roches sédimentaires. *Schweiz. Min. Petr. Mitt.*, 4, p. 29-50.

DICKINSON W. R., OJAKANGAS R. W. et STEWART R. J. (1969) - Burial metamorphism of the late Mesozoic Great Valley sequence, Cache Creek, California. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 80, p. 519-526.

DIETZ R. S. (1941) - Clay minerals in recent marine sediments. Thèse Univ. Illinois. Résumé in *Amer. Min.* 1942, 27, p. 219-220.

DRITS V. A. et KOSSOVSKAIA A. G. (1965) - La sangarite, nouveau minéral interstratifié ordonné. *Dokl. Akad. Nauk* S. S. S. R., 151.

DRITS V. A. et SHUTOV V. D. (1966) - New variety of mixed-layer mineral of the sudoit group. *Lithol. I. Polez. Iskop.*, 4, p. 130-133.

DROSTE J. B. (1961) - Clay minerals in the playa sediments of the Mojave Desert, California. *Calif. Div. Mines Spec. Rep.* 69, 19 p.

DUNHAM K. C., CLARINGBULL G. F. et BANNISTER F. A. (1948) - Dickite and colophane in the magnesian limestones of Durham. *Min. Mag.*, 28, p. 338-342.

DUNOYER de SEGONZAC G. (1964) - Les argiles du Crétacé supérieur dans le bassin de Douala (Cameroun) : problèmes de diagenèse. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 17, p. 287-310.

DUNOYER de SEGONZAC G., ARTRU P. et FERRERO J. (1965) - Sur une transformation des minéraux argileux dans les "terres noires" du bassin de la Durance influence de l'orogénie alpine. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 262, D, p. 2409-2412.

DUNOYER de SEGONZAC G. et CLAUER N. (1966) - Etude des minéraux argileux dans quelques forages du Tinrhert. Rapport inédit, E. R. A. P. -Fac. Sci. Strasbourg, 37 p.

DUNOYER de SEGONZAC G. et KUBLER B. (1966) - La cristallinité de l'illite. Mesures faites au Laboratoire de Géologie de la Faculté des Sciences de Strasbourg et au Centre de Recherche S. N. P. A. de Pau sur des forages B. R. P. *Bull. Techn. des Sociétés du Groupe E.R.A.P.*, 27, p. 16-41.

DUNOYER de SEGONZAC G., FERRERO J. et KUBLER B. (1968) - Sur la cristallinité de l'illite dans la diagenèse et l'anchimétamorphisme. VII Congr. Intern. Sedim., Reading-Edimbourg, 1967, et *Sedimentology*, 10, p. 137-143.

ECKHARDT F. J. (1959) - Über Chlorite in Sedimenten. *Geol. Jb.*, 75, p. 437-474.

ECKHARDT F. J. (1964) - Über den Einfluss der Temperatur auf den kristallographischen Ordnungsgrad von Kaolinit. Ist Intern. Clay Conf. Stockholm, 2, p, 137-145.

EGGLESTON R. A. et BAILEY S. W. (1967) - Structural aspects of dioctahedral chlorite. *Amer. Min.*, 52, p. 673-689.

EHLMANN A. J. et SAND L. B. (1959) - Occurence of shales partially altered to pyrophyllite. *Clays and Clay Min.*, (6th Nat. Conf., 1957), p. 386-391.

EHRMANN M. (1967) - Contrôle de l'épaisseur des dépôts orientés d'argile. Influence de l'épaisseur sur la réponse des rayons X. Diplôme d'Etudes Supérieures, Strasbourg, 36 p.

ELLENBERGER F. (1958) - Etude géologique du pays de Vanoise. *Mém. Carte Géol. Fr.*, 561 p.

EMERY K.O. et RITTENBERG S.C. (1952) - Early diagenesis of California basin sediments in relation to origin of oil. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 36, p. 735-806.

ENDELL K., HOFMANN U. et MÄGDEFRAU E. (1935) - Über die Natur des Tonanteils in Rohstoffen der deutschen Zementindustrie. *Zement*, 24, p. 625-632.

ENGELHARDT W. von (1960) - Der Porenraum der Sedimente. Springer, Berlin, 207 p.

ENGELHARDT W. von, MULLER G. et KROMER H. (1962) - Dioktaedrischer Chlorit ("Sudoit") in Sedimenten des mittleren Keupers von Plochingen (Württemberg). *Naturwissensch*, 9, p. 205-206.

ENGELHARDT W. von (1967) - Interstitial solutions and diagenesis in sediments. In : G. LARSEN and G.V. CHILINGAR (ed.), Diagenesis in sediments. Elsevier, p. 503-521.

ESQUEVIN J. et KULBICKI G. (1963) - Les minéraux argileux de l'Aptien supérieur du bassin d'Arzacq (Aquitaine). *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 16, p. 197-204.

ESQUEVIN J. (1969) - Influence de la composition chimique des illites sur leur cristallinité. *Bull. Centre Rech. Pau-S.N.P.A.*, 3, p. 147-154.

FABRE J. (1969) - Remarques sur la structure du Sahara occidental et central (à propos de la Carte Tectonique de l'Europe au 2/500.000°, feuilles 13 et 14). *Bull. Soc. Hist. Nat. Afrique du Nord*, 60, p. 43-73.

FAIRBAIRN H.W. (1943) - X-ray petrology of some fine grained folliated rocks. *Amer. Min.*, 28, p. 246-256.

FAIRBRIDGE R.W. (1967) - Phases of diagenesis and authigenesis. In : G. LARSEN et G.V. CHILINGAR (ed.), Diagenesis of sediments. Elsevier, p. 19-89.

FAIRBRIDGE R.W. (1967) - Syndiagenesis-anadiagenesis-epidiagenesis. Revival and feedback. VII Congr. Intern. Sedim., Reading-Edimbourg.

FAUST G.T. et FLEISCHER M. (1952) - New mineral names (allevardite = caillerite = tabulite = deriberite). *Amer. Min.*, 37, p. 135.

FERRERO J. et KUBLER B. (1964) - Présence de dickite et de kaolinite dans les grès cambriens d'Hassi Messaoud. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 17, p. 247-261.

FERSMAN A.E. (1922, 1934, 1937) - Geochemistry of Russia. 1, 2, 3. *Geokhimtekhizdat*, Leningrad.

FISCHER G. (1933) - Gedanken zur Gesteinssystematik. *Jb. Preuss. Geol. Landesanst.*, 54, p. 553-584.

FISCHER W. (1961) - Gesteins - und Lagerstättenbildung im Wandel der wissenschaftlischen Anschauung. Schweizerbart, Stuttgart, 592 p.

FLAWN P.T. (1953) - Petrographic classification of argillaceous sedimentary and lowgrade metamorphic rocks in subsurface. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 37, p. 560-565.

FLEISHER M. (1943) - Discredited species : illite-bravaisite. *Amer. Min.*, 28, p. 214 et 470.

FOLK R.L. (1965) - Some aspects of recrystallisation in ancient limestones. In : Dolomitization and limestone diagenesis. A symposium. *Soc. Econ. Pal. Miner., Spec. Publ.*, 13, p. 14-48.

FOLLETT E.A.C., McHARDY W.J., MITCHELL B.D. et SMITH B.F.L. (1965) - Chemical dissolution techniques in the study of soil clays. *Clay Minerals*, 6, p. 23-43.

FOLLOT J. (1952) - Ahnet et Mouydir. 19° Congr. Géol. Intern. Alger, Monogr. Régionales 1ère série, 1, 80 p.

FOSTER M.D. (1954) - The relation between "illite", beidellite and montmorillonite. *Clays and Clay Min.*, (2d Nat. Conf., 1953), p. 386-397.

FOSTER M.D. (1962) - Interpretation of the composition and a classification of the chlorites. *Geol. Surv. Prof. Paper*, 414-A, 33 p.

FOSTER M.D. (1964) - Water content of micas and chlorites. A study of the (OH,F)/O relation in micas and of the OH/O relation in chlorites. *Geol. Surv. Prof. Paper*, 474-F, 15 p.

FOURMARIER P. (1949) - Principes de géologie. 2 volumes. Masson et Cie, Paris. 1523 p.

FRANK-KAMENETSKY V.A., LOGVINENKO N.V. et DRITS V.A., (1965) - Un minéral interstratifié dioctaédrique : le tosudite. *Dokl. Akad. Nauk* S.S.S.R., 151.

FRANKE D. (1963) - Zu Fragen geologischer Terminologie und Klassification. II. Der Begriff Fazies. *Zeitschr. Angew. Geol.* Berlin, 9, p. 39-45 et 97-102.

FREULON J.M. (1964) - Etude des séries primaires du Sahara central. C.N.R.S., Série Géologie, 3, 198 p.

FRIEDMAN G.M. (1964) - Early diagenesis and lithification in carbonate sediments. *Journ. Sedim. Petrol.*, 34, p. 777-813.

FRIEDMAN G.M. (1965) - Occurence of talc as a clay mineral in sedimentary rocks. *Nature*, 207, 4994, p. 283-284.

FRITSCH W. (1966) - Zum Einteilungsprinzip der Gesteine nach dem Umwandlungsgrad mit besonderer Berücksichtigung der Anchimetamorphose. *Neues Jb. Min., Abh.*, 105, p. 111-132.

FÜCHTBAUER H. et GOLDSCHMIDT H. (1959) - Die Tonminerale der Zechsteinformation. *Beitr. Min. Petr.*, 6. p. 320-345.

FÜCHTBAUER H. et GOLDSCHMIDT H. (1963) - Beobachtungen zur Tonmineral-Diagenese. *I st Intern. Clay Conf. Stockholm*, Pergamon, 1, p. 99-111 ; 2 p. 249-251.

FYFE W.S., TURNER F.J. et VERHOOGEN J. (1958) - Metamorphic reactions and metamorphic facies. *Mem. Geol. Soc. Amer.*, 73, 259 p.

GAGNY C. et NICOLAS A. (1966) - La séparation des minéraux dans les roches. Nantes, 74 p.

GALPIN S.L. (1912) - Studies on flint clays and their associates. *Trans. Amer. Ceram. Soc.*, 14, p. 301-346.

GAUDETTE H.E., EADES J.L. et GRIM R.E. (1966) - The nature of illite. *Clays and Clay Min.*, (13th Nat. Conf., 1964), p. 33-48.

GAZEL J., HOURCQ V. et NICKLES M. (1956) - Carte géologique du Cameroun au 1/1 000 000° et notice explicative. *Bull. Dir. Min. Géol.* Cameroun, 2, 68 p.

GAZEL J. (1960) - Géologie. In : Atlas du Cameroun. *Bull. Inst. Rech. Sci. Cameroun*, 2, p. 1-2.

GEVIN P. (1960) - Etudes et reconnaissances géologiques sur l'axe cristallin Yetti-Eglab et ses bordures sédimentaires. I° partie : Bordures sédimentaires. *Bull. Serv. Carte Géol. Algérie, nouv. série*, 23, 327 p.

GEZE B. (1949) - Etude géologique de la Montagne Noire et des Cévennes méridionales. *Mém. Soc. Géol. Fr.*, nouv. série, 62, 215 p.

GIBBS R.J. (1965) - Error due to segregation in quantitative clay mineral x-ray diffraction mounting techniques. *Amer. Min.*, 50, p. 741-751.

GINSBURG R.N. (1957) - Early diagenesis and lithification of shallow-water carbonate sediments in South Florida. In : Regional aspects of carbonate deposition. *Soc. Econ. Pal. Miner., Spec. Publ.*, 5, p. 80-100.

GLAESER R. (1954) - Complexes organo-argileux et rôle des cations échangeables. Thèse Sci. Paris, Imprimerie Nationale, 68 p.

GLANGEAUD L. (1941) - Corrélation statistique, classification et hiérarchie des facteurs intervenant dans la formation des sédiments. *Bull. Soc. Géol. Fr.*, (5), 11, p. 371-388.

GLANGEAUD L. (1955) - Classification scalaire des sciences de la matière et leurs méthodes. *Rev. gén. Sciences*, 62, 5-6, 30 p.

GLASS H.D., POTTER P.E. et SIEVER R. (1956) - Clay mineralogy of some basal pennsylvanian sandstones, clays and shales. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 40, p. 750-754.

GLOVER J.E. (1963) - Studies on the diagenesis of some western australian sedimentary rocks. *Journ. Roy. Soc. West. Australia*. 46, p. 33-56.

GLOVER J.E. (1964) - The universal stage in studies of diagenetic textures. *Journ. Sedim. Petrol.*, 34, p. 851-854.

GOTTIS M. (1957) - Contribution à la connaissance géologique du Bas Languedoc. Thèse Montpellier, éditée à Bordeaux, 344 p.

GRABAU A.W. (1904) - On the classification of sedimentary rocks. *Amer. Geol*, 35, p. 225-247.

GREENE-KELLY R. (1953) - Identification of montmorilloïds. *Journ. Soil. Sci.*, 4, p. 233-237.

GREENE-KELLY R. (1957) - The montmorillonite minerals (Smectites). In : R.C. MACKENZIE (ed.), The differential thermal investigation of clays. Miner. Soc., London, p. 140-164.

GRIFFIN G.M. et PARROTT B.S. (1964) - Development of clay mineral zones during deltaic migration. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 48, p. 56-69.

GRIFFIN G.M. (1967) - X-ray diffraction techniques applicable to studies of diagenesis and low rank metamorphism in humic sediments. *Journ. Sedim. Petrol.*, 37, p. 1006-1011.

GRIFFITHS J.C. (1952) - Reaction in the finer grained rocks. *Clay Min. Bull.*, 1, p. 251-257.

GRIM R.E. (1935) - Petrology of pennsylvanian shales and non calcareous underclays associated with Illinois coals. *Bull. Amer. Ceram. Soc.*, 14, p. 113-119, 129-134, 170-176.

GRIM R.E., BRAY R.H. et BRADLEY W.F. (1937) - The mica in argillaceous sediments. *Amer. Min.*, 22, p. 813-829.

GRIM R.E. et ROWLAND R.A. (1942) - Differential thermal analysis of clay mineral and other hydrous materials. *Amer. Min.*, 27, p. 746, 761-801, 818.

GRIM R.E. et BRADLEY W.F. (1948) - The illite clay minerals. 18° Congr. Géol. Intern. Londres, p. 127-128.

GRIM R.E., DIETZ R.S., BRADLEY W.F. (1949) - Clay mineral composition of some sediments from the Pacific Ocean of the California Coast and the Gulf of California. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 60, p. 1785-1808.

GRIM R.E., BRADLEY W.F. et BROWN G. (1951) - The mica clay minerals. In : G.W. BRINDLEY (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. *Miner. Soc.*, London, p. 138-172.

GRIM R.E. (1951) - The depositional environment of red and green shales. *Journ. Sedim. Petrol.*, 21, p. 226-232.

GRIM R.E. (1953) - Clay mineralogy. McGraw-Hill, New-York, 384 p.

GRIM R.E. et BRADLEY W.F. (1955) - Structural implications in diagenesis. *Geol. Rundsch.*, 43, p. 469-474.

GRIM R.E., BRADLEY W.F. et WHITE W.A. (1957) - Petrology of the paleozoic shales of Illinois. *Illinois St. Geol. Surv.*, 203, 35 p.

GRIM R.E. (1958) - Concept of diagenesis in argillaceous sediments. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 42, p. 246-253.

GRIM R.E., DROSTE J.B. et BRADLEY W.F. (1960) - A mixed layer clay mineral associated with an evaporite. *Clays and Clay Min.* (8th Nat. Conf., 1959), p. 228-236.

GRIM R.E. et VERNET J.P. (1961) - Etude par diffraction de minéraux argileux de vases méditerranéennes. *Schweiz. Min. Petr. Mitt.*, 41, p. 65-70.

GRUBENMANN V. (1904-1906) - Die kristallinen Schiefer. Borntraeger, Berlin, 298 p.

GRUBENMANN V. et NIGGLI P. (1924) - Die Gesteinsmetamorphose. I. Allgemeiner Teil. Borntraeger, Berlin, 539 p.

GRUNER J.W. (1932) - The crystal structure of kaolinite. *Zeitschr. Krist.*, p. 75-88.

GRUNER J.W. (1932) - Structure of dickite. *Zeitschr. Krist.*, 83, p. 394-404.

GRUNER J.W. (1933) - Structure of nacrite and optical properties of kaolin group minerals. *Zeitschr. Krist.*, 85, p. 345-354.

GRUNER J.W. (1934) - The structures of vermiculites and their collapse by dehydration. *Amer. Min.*, 19, p. 557-575.

GUBLER Y., BUGNICOURT D., FABER J. et al. (1966) - Essai de nomenclature et caractérisation des principales structures sédimentaires. Technip, Paris, 291 p.

GUIDOTTI C.V. (1966) - Variations of the basal spacings of muscovite in sillimanite-bearing pelitic schists of north-western Maine. *Amer. Min.*, 51, p. 1778-1786.

GUIDOTTI C.V. (1968) - On the relative scarcity of paragonite. *Amer. Min.*, 53, p. 963-974.

GUINIER A. (1964) - Théorie et technique de la radiocristallographie. Dunod, Paris, 740 p.

GUITARD G. (1965) - Associations minérales, subfaciès et types de métamorphisme dans les micaschistes et les gneiss pélitiques du massif du Canigou (Pyrénées-Orientales). *Bull. Soc. Géol. Fr.*, 7, p. 356-382.

GUITARD G. (1970) - Le métamorphisme hercynien mésozonal et les gneiss oeillés du massif du Canigou, Pyrénées orientales. *Mém. B.R.G.M.*, 63, 353 p.

GÜMBEL C.W. von (sans date, probablement 1866) - Kurze Anleitung zu geologischen Beobachtungen in den Alpen. Separatabdruck aus der vom deutschen und österreichischen Alpenverein herausgegebenen Anleitung zu wissenschaftlichen Beobachtungen auf Alpenreisen. Breitkopf u. Härtel, 192 p.

GÜMBEL C.W. von (1868) - Geognostische Beschreibung des ostbayerischen Grenzgebirges oder des bayerischen und oberpfalzer Waldgebirges. J. Perthes, Gotha, 968 p.

GÜMBEL C.W. von (1888) - Grundzüge der Geologie. Verlag Fischer, Kassel, 1144 p.

HAARMANN E. (1935) - Um das geologische Weltbild. Malleo et Mente, Stuttgart, 108 p.

HAGUENAUER B. (1969) - Sédimentation rythmique et distribution des argiles dans la série paralique miocène du bassin du Tage (Portugal). *C.R. Acad. Sci.* Paris, 268, D, p. 2237-2239.

HARDER H. (1956) - Untersuchungen an Paragoniten und an natriumhaltigen Muskoviten. *Heidelberger Beitr.*, 5, p. 227-271.

HARKER A. (1954) - Petrology for students. An introduction to the study of rocks under the microscope. 8th edition. Cambridge Univ. Press., London, 283 p.

HARRASSOWITZ H. (1927) - Anchimetamorphose, das Gebiet zwischen Oberflächen und Tiefen-Umwandlung der Erdrinde. *Ber. Oberhessischen Ges. Nat. Heilk.* Giessen, Naturwissensch. Abteilung, 12, p. 9-15.

HARRASSOVITZ H. (1928) - Anchimetamorphose. 2te Mitteilung. *Ber. Oberhessischen Ges. Nat. Heilk.* Giessen, Naturwissensch. Abteilung, 12, p. 28-37.

HATCH F.H. et RASTALL R.H. (1965) - Petrology of the sedimentary rocks. 4ème éd. revue par J.T. GREENSMITH. Thomas Murby, London, 408 p.

HAUG E. (1907) - Traité de géologie. 1. Les phénomènes géologiques. 2. Les périodes géologiques. Armand Colin, Paris, 2021 p.

HAY R.L. (1966) - Zeolites and zeolitic reactions in sedimentary rocks. *Geol. Soc. Amer. Spec. Pap.* n° 85, 130 p.

HAYES J.B. (1967) - Dickite in Lausing group (Pennsylvanian) limestones, Wilson and Montgomery countries, *Kansas. Amer. Min.*, 52, p. 890-896.

HECKROODT R.O. et ROERING C. (1965) - A high-aluminous chlorite-swelling chlorite regular mixed layer clay mineral. *Clay minerals*, 6, 2, p. 83-89.

HEDEMANN H.A. et TEICHMÜLLER R. (1963) - Stratigraphie und Diagenese des Oberkarbons in der Bohrung Münsterland 1. *Zeitschr. Deutsch. Geol. Ges.*, 115, p. 787-825.

HEMINGWAY J.E. et BRINDLEY G.W. (1948) - The occurence of dickite in some sedimentary rocks. Rep. 18° Intern. Geol. Congr. London, 13, p. 308.

HEMLEY J.J. (1959) - Some mineralogical equilibria in the system K_2O-Al_2O_3-SiO_2-H_2O. *Amer. Journ. Sci.*, 257, p. 241-270.

HENDRICKS S.B. et FRY W.H. (1930) - X-ray and microscopic examination of soil colloids. Soil Sci., 29, p. 457-478.

HENDRICKS S.B. et JEFFERSON M.E. (1938) - Crystal structure of vermiculites and mixed vermiculite-chlorite. *Amer Min.*, 23, p. 851-862.

HENDRICKS S.B. (1938) - On the structure of the clay minerals : dickite, halloysite and hydrated halloysite. *Amer. Min.*, 23, p. 295-301.

HENDRICKS S.B. (1939) - Structure of nacrite and polymorphism of the kaolin minerals. *Zeitschr. Krist.*, 100, p. 509-518.

HENDRICKS S.B. et JEFFERSON M.E. (1939) - Polymorphism of the micas. *Amer. Min.*, 24, p. 729-771.

HERMANS P.H. et WEIDINGER A. (1950) - Cristallinity of precipitated cellulose. *Journ. Polym. Sci.*, 5, p. 565-568.

HEY M.H. (1954) - A new review of the chlorites. *Min. Mag.*, 30, p. 277-292.

HEYSTEK H. (1954) - An occurence of a regular mixed-layer clay mineral. *Min. Mag.*, 30, p. 400-408.

HINTERLECHNER-RAVNIK A. (1961) - Paragonite in the dolomitic marble from Cvetkovo Gjubriste, Macedonia. *Geologija Razprave in Porocila* (Ljubljana), 7, p. 133-137.

HO C. et HANDY R.L. (1964) - Effect of lime on electro-kinetic properties of bentonites. *Clays and Clay Min.* (12th Nat Conf. 1963), p. 268-280.

HOELDER H. (1960) - Geologie und Paläontologie in Texten und ihrer Geschichte. Karl Abn, Freiburg i. Br., 566 p.

HOFMANN U., ENDELL K. et WILM D. (1934) - X-ray and colloid chemical investigations on clay. *Angew. Chemie*, 47, p. 539-547.

HORIKOSHI E. (1965) - Chlorite from Sanbagawa Schists. *Journ. Geol. Soc.* Japan, 71, 839, p. 419-424.

HORNE R.R. (1968) - Authigenic prehnite, laumontite and chlorite in the lower cretaceous sediments of south-eastern Alexander Island. *Brit. Antarctic. Surv. Bull.*, 18, p. 1-10.

HOURQ V. (1956) - Bassins sédimentaires du Cameroun. 20° Congr. Géol. Intern. Mexico, Symposium Gis. Pétr. Gaz, 1, p. 45-68.

HOWER J.H. et MOWATT T.C. (1966) - The mineralogy of illites and mixed layer illite-montmorillonites. *Amer. Min.*, 51, p. 825-854.

HOWER J. (1967) - Order of mixed-layering in illite-montmorillonites. *Clays and Clay Min.* (15th Nat. Conf., 1966), p. 63-74.

HUFF W.D. (1963) - Mineralogy of ordovician K-Bentonites in Kentucky. *Clays and Clay Min.* (11th Nat. Conf., 1962), p. 200-209.

HUMMEL K. (1922) - Die Entstehung eisenreicher Gesteine durch Halmyrolyse (sub-marine Gesteinszersetzung). *Geol. Rundsch.*, 13, p. 40-81 et 97-136.

HUTCHINGS W.M. (1890) - Note on the probable origin of some slates. Geol. Mag., 3, 7, p. 264-273 et 316-322.

IANOVICI V. et NEACSU G. (1968) - Note sur la présence de la nacrite dans les argiles du Lias inférieur des montagnes Padurea Craiului. *Stud. Cerc. Geol. Geofiz. Geogr.* Ser. Geol., 13, p. 309-314.

IRVING R.D. et van HISE C.R. (1884) - On secondary enlargements of mineral fragments in certain rocks. U.S. *Geol. Surv. Bull.*, 8, 56 p.

IWASAKI M. (1963) - Metamorphic rocks of the Kotu-Bizan area, eastern Shikoku. *Journ. Fac. Sci. Univ. Tokyo*, Sec. II, 15, p. 1-90.

JANSA L. et DURCAKOVA L. (1965) - Clay minerals with mixed illite-montmorillonite structures in the Carboniferous of the Ostrava district. *Cas. Miner. Geol. Ceskosl.*, 10, 4, p. 391-402.

JARDINE S. (1965) - Synthèse des études palynoplanctologiques concernant le Gothlandien et le Dévonien du Tinrhert et des régions avoisinantes. Rapp. C.E.P.

JARDINE S. et YAPAUDJIAN L. (1967) - Lithographie et palynologie du Dévonien-Gothlandien gréseux du bassin de Polignac (Sahara). Rapp. ELF-RE, 17 p.

JARON M.G. (1967) - A method for determining post-depositional alteration in underclays and associated lithologies. Comm. of Pennsylvania Dep. Int. Affairs, Bur. Topogr. Geol. Surv., Inform. Circular 57, Harrisburg, 14 p.

JOHNSTONE A. (1889) - On the action of pure water and of water saturated with gas on the minerals of the mica family. *Quart. Journ. Geol. Soc.*, 45, p. 363.

JULLIAN Y. (1957) - La Camargue. Mise au point à la date du 30 mars 1957. Rap. C.E.P., n° 234, 65 p.

JUNG J. (1958, 1963) - Précis de pétrographie. Masson et Cie, Paris. 1° éd. 314 p., 2° éd. 319 p.

KALKOWSKY E. (1886) - Elemente der Lithologie. Winter Heidelberg, 316 p.

KAPLAN I.R. et RITTENBERG S.C. (1963) - Basin sedimentation and diagenesis. In : M. N. HILL (ed.), The sea, 3. The Earth Beneath the Sea. Interscience, New-York, p. 583-619.

KARPOVA G.V. (1966) - On paragonitic hydromicas in terrigenous rocks of the Great Donets basin. *Dokl. Akad. Nauk* S.S.S.R., 171, p. 443-445.

KAUTZ K. (1967) - Zur Frage der Montmorillonitbildung aus Biotit. Untersuchungen an einem rezenten See-Sediment aus Griechenland. *Neues Jb. Min., Monatsh.* 7-8, p. 193-204.

KELLER W.D. (1963) - Diagenesis in clay minerals. A review. *Clays and Clay Min.* (11th Nat. Conf., 1962), p. 136-157.

KELLER W.D. (1964) - Processus of origin and alteration of clay minerals. In : RICH C.I. et KUNZE G.W. (ed.), Soil clay Mineralogy : a symposium. The Univ. of North-Carolina Press, p. 3-76.

KELLER W.D. (1968) - Flint clay and flint-clay facies. *Clays and Clay Min.*, 16, p. 113-128.

KEPEZHINSKAS K.B. et SOBOLEV V.S. (1965) - Paragenetic types of chlorite. *Dokl. Akad. Nauk* S.S.S.R., 161, p. 436-439.

KERNS R.L. (1967) - Particle size separation of clays. *Oklahoma Geology. Notes*, 27, 9, p. 167-174.

KESSLER P. (1922) - Über Lochverwitterung und ihre Beziehungen zur Metharmose (Umbildung) der Gesteine. *Geol. Rundsch.*, 12, p. 237-270.

KHITAROV N.I. et PUGIN V.A. (1966) - Behaviour of montmorillonite under elevated temperatures and pressures. *Geokhim.* S.S.S.R., 7, p. 790-795 et *Geochem. Intern.* 3, 4, p. 621-626.

KIENAST J.R. et VELDE B. (1968) - Sur l'existence probable d'un nouveau type de substitution ionique affectant les paragonites. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 267, D, p. 1909-1912.

KISCH H.J. (1966) - Zeolite facies and regional rank of bituminous coals. *Geol. Mag.*, 103, p. 414-422.

KISCH H.J. (1966) - Chlorite-illite tonstein in high-rank coals from Queensland, Australia : notes on regional epigenetic grade and coal rank. *Amer. Journ. Sci.*, 264-397.

KISCH H.J. (1968) - Coal rank and lowest-grade regional metamorphism in the southern Bowen Basin, Queensland, Australia. *Geol. en Mijnbouw*, 47, p. 28-36.

KISCH H.J. (1969) - Coal-rank and burial metamorphic mineral facies. In : Adv. in Organic Geochemistry 1968. Pergamon Press, p. 407-425.

KLINGEBIEL A. et LATOUCHE C. (1962) - Etude cristallographique des illites dans les séries éocènes du Bordelais. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 255, p. 142-144.

KNEBEL H.J., KELLY J.C. et WHETTEN J.T. (1968) - Clay minerals of the Columbia river : a qualitative, quantitative, and statistical evaluation. *Journ. Sedim. Petrol.*, 38, p. 600-611.

KODAMA H. (1958) - Mineralogical study on some pyrophyllites in Japan. *Miner. Journ.* Japan, 2, p. 236-244.

KODAMA H. (1966) - The nature of the component layers of rectorite. *Amer. Min.* 51, p. 1035-1055.

KODAMA H. et BRYDON J.E. (1966) - Interstratified montmorillonite-mica clays from subsoils of the Prairie Provinces, Western Canada. *Clays and Clay Min.* (13th Nat. Conf., 1964), p. 151-173.

KOIZUMI M. et ROY R. (1959) - Synthetic montmorillonoids with variable exchange capacity. *Amer. Min.*, 44, p. 788-805.

KONTA J. et BOROVEC Z. (1965) - Illite separated from the natural kaolin of Sedlec. *Acta Univ. Carol.*, Prague, Geol., Suppl. 2, p. 85-90.

KOPELIOVICH A. V. (1965) - Epigenesis of the old series, south-western part of russian platform. *Akad. Nauk* S.S.S.R., *Trudy, Geol. Inst.*, 121, 310 p.

KOROLEV Y. M. (1960) - The structure of allevardite. *Kristallographiya*, 5, p. 891-895. Trad. anglaise : Soviet Phys. Cryst., 5, p. 848-852 (1961).

KOSSOVSKAIA A. G. et SHUTOV V. D. (1957) - Essai d'analyse stadiale des roches terrigènes de la région géosynclinale. Méthode d'étude des roches sédimentaires. *Ann. du Serv. Inform. Geol. B.R.G.M.*, 35, p. 267-283.

KOSSOVSKAIA A. G. et SHUTOV V. D. (1958) - Zonality in the structure of terrigene deposits in platform and geosynclinal regions. *Ecl. Geol. Helv.*, 51, p. 656-666.

KOSSOVSKAIA A. G. et SHUTOV V. D. (1961) - The correlation of zones of regional epigenesis and metagenesis in terrigenous and volcanic rocks. *Dokl. Akad. Nauk* S.S.S.R., 139, p. 677-680.

KOSSOVSKAIA A. G. (1962) - Minéralogie du complexe terrigène mésozoïque du bassin de Verkoïansk. *Akad. Nauk* S.S.S.R., Trudy Geol. Inst., 63, 204 p.

KOSSOVSKAIA A. G. et SHUTOV V. D. (1963) - Facies of regional epi- and metagenesis. *Izvest. Akad. Nauk* S.S.S.R., Ser. Geol., 28, 7, p. 3-18. Trad. : Intern. Geol. Res., U.S.A., (1965), 7, p. 1157-1167.

KOSSOVSKAIA A. G. (1966) - Typization and genetic significance of mixed-layer clay minerals. In : Physical research methods of sedimentary rock minerals. *Akad. Nauk* S.S.S.R., Moscou, p. 163-180.

KOTELNIKOV D. D. (1965) - Sur les caractères morphologiques des illites dans les roches sédimentaires. *Mineral. Sbornik*, 19, p. 26-35.

KRUMBEIN W. C. (1942) - Physical and chemical changes in sediments after deposition. *Journ. Sedim. Petrol.*, 12, p. 111-117.

KRUMBEIN W. C. (1947) - Analysis of sedimentation and diagenesis. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 31, p. 168-174.

KRUMBEIN W. C. et GARRELS R. M. (1952) - Origin and classification of chemical sediments in term of pH and oxidation-reduction potentials. *Journ. Geol.*, 60, p. 1-34.

KRUMBEIN W. C. et SLOSS L. L. (1963) - Stratigraphy and sedimentation. Freeman and Co, San Francisco, 660 p.

KUBLER B. (1963) - Untersuchungen über die Tonfraktion der Trias der Sahara. Ein Beispiel gegenseitiger Abhängigkeit der Salinität und der Tonminerale. *Fortschr. Geol. Rheinl Westf.*, 10, p. 319-324.

KUBLER B. (1964) - Les argiles, indicateurs de métamorphisme. *Rev. Inst. Fr. Pétrole*, 19, p. 1093-1112.

KUBLER B. (1966) - La cristallinité de l'illite et les zones tout à fait supérieures du métamorphisme. In : Colloque sur les Etages Tectoniques. A la Baconnière, Neuchâtel, Suisse, p. 105-122.

KUBLER B. et VAN DER WEIDE B. (1967) - Etude de la diagenèse organique et minérale dans huit sondages de la région du Tinrhert. Rap. inédit, E.R.A.P. - S.N.P.A., Note R/GS 17479 bis, Réf. BK/cv.

KUBLER B. (1967) - Anchimétamorphisme et schistosité. *Bull. Centre Rech. Pau-S.N.P.A.*, 1, p. 259-278.

KUBLER B. (1968) - Evaluation quantitative du métamorphisme par la cristallinité de l'illite. Etat des progrès réalisés ces dernières années. *Bull. Centre Rech. Pau-S.N.P.A.*, 2, p. 385-397.

KULBICKI G. (1953) - Constitution et genèse des sédiments argileux sidérolithiques et lacustres du nord de l'Aquitaine. Thèse Sci. Toulouse et *Sci. de la Terre*, Nancy, (1956), 4, p. 5-101.

KULBICKI G. (1953) - Sur les conditions de cristallisation des minéraux kaoliniques dans le sidérolithique d'Aquitaine. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 237, p. 194-196.

KULBICKI G. (1954) - Phénomènes de diagenèse dans les sédiments argileux. *Clay Min. Bull.*, 2, p. 183-188.

KULBICKI G. et MILLOT G. (1959) - Apport des minéraux argileux interstratifiés à la géologie des séries sédimentaires. *Bull. Gr. Fr. Argiles*, 11, p. 47-52.

KULBICKI G. et MILLOT G. (1960) - L'évolution de la fraction argileuse des grès pétroliers cambro-ordoviciens du Sahara central. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 13, p. 147-156.

KULBICKI G. et MILLOT G. (1961) - Diagenesis of clays in sedimentary and petroliferous series. *Clays and Clay Min.* (10th Nat. Conf., 1961), p. 329-330.

KULKE H. (1969) - Petrographie und Diagenese des Stubensandsteines (mittlerer Keuper) aus Tiefbohrungen im Raum Memmingen (Bayer). *Contr. Min. Petr.*, 20, p. 135-163.

KUNZE G.W., KNOWLES L.I. et KITANO Y. (1968) - The distribution and mineralogy of clay minerals in the Taku estuary or southeastern Alaska. *Marine Geol.*, 6, p. 439-448.

LAFOND R. (1965) - Cycle cristallographique des kaolinites au cours des phénomènes superficiels en zone intertropicale. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 260, p. 5320-5323.

LAFOND R. (1967) - Etudes littorales et estuariennes en zone intertropicale humide. Thèse Fac. Sci. Orsay, 3 volumes, 836 p.

LAMBERT C. (1967) - Bassin de Fort Polignac (Sahara). Sept cartes de synthèse au 1/500 000e. Rapp. SOPEFAL.

LANG R. (1914) - Lublinit, die monokline Modifikation des Calciumkarbonates. *Neues Jb. Min.*, Beilagebd. 38, p. 121-184.

LAPPARENT A. de (1906) - Traité de géologie. Masson et Cie, Paris, 2014 p.

LAPPARENT J. de (1909) - Etude comparative de quelques porphyroïdes françaises. *Bull. Soc. Fr. Min.*, 32, p. 174-304.

LAPPARENT J. de (1923) - Leçons de pétrographie. Masson et Cie, Paris, 501 p.

LAPPARENT J. de (1935) - Les étages du métamorphisme des émeris de Samos. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 201, p. 154-156.

LAPPARENT J. de (1941) - Logique des minéraux du granite. *Rev. Scientifique*, p. 285-292.

LAPPARENT J. de (1946) - La géochimie du chemin des profondeurs dans le passage des bauxites aux émeris. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 223, p. 265-267.

LARSEN G. et CHILINGAR G.V. (ed.) (1967) - Diagenesis in sediments. Developments in Sedimentology, Elsevier, Amsterdam, 551 p.

LELONG F. et MILLOT G. (1966) - Sur l'origine des minéraux micacés des altérations latéritiques. Diagenèse régressive - Minéraux en transit. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 19, p. 271-287.

LEMOINE E. (1935) - Sur un nouveau minéral trouvé dans les calcaires bajociens de la Table. *Bull. Soc. Hist. Nat. Savoie*, 23, p. 199-202.

LEVINSON A.A. (1955) - Studies in the mica group : polymorphism among illites and hydrous micas. *Amer. Min.*, 40, p. 41-49.

LISTER J.S. et BAILEY S.W. (1967) - Chlorite polytypism : IV. Regular two-layer structures. *Amer. Min.*, 52, p. 1614-1631.

LOGVINENKO N.V. et KARPOVA G.V. (1968) - Stages of postdiagenetic alterations in rocks of coal-bearing formations. 23d Intern. Geol. Congr., Abstracts, p. 238-239.

LOMBARD A. (1956) - Géologie sédimentaire. Les séries marines. Masson et Cie, Paris, 722 p.

LOMBARD A. (1967) - Guide géologique de la Suisse. Soc. Géol. Suisse, Wepf et Cie, Bâle, 9 fasc., 915 p.

LONG G., NEGLIA S. et FAVRETTO L. (1964) - Geochemical contribution to research for the reconstruction of the paleogeography of a sedimentary basin. In : COLOMBO U. et HOBSON G.D. (ed.), Adv. Organic Geochemistry, Pergamon Press, p. 239-259.

LONG G., NEGLIA S. et FAVRETTO L. (1966) - Geochemical studies on the Cretaceous black shales of the Cyrenaica basin. *Intern. Ser. Monogr. Earth Sci*, G.B., 24, p. 101-113.

LONG G. et NEGLIA S. (1968) - Composition de l'eau interstitielle des argiles et diagenèse des minéraux argileux. *Rev. Inst. Fr. Pétrole*, 23, p. 53-69.

LOUGHNAN F.C. (1957) - A technique for the isolation of montmorillonite and halloysite. *Amer. Min.*, 42, p. 393-397.

LOUNSBURY R.W. et MELHORN W.N. (1964) - Clay mineralogy of paleozoic K-bentonites of the eastern United States. Part I. *Clays and Clay Min.* (12th Nat. Conf., 1963), p. 557-566.

LOUIS M.C. et TISSOT B.P. (1967) - Influence de la température et de la pression sur la formation des hydrocarbures dans les argiles à kérogène. 7th World Petroleum Congr., Mexico, 2, p. 47-60.

LUCAS J. (1962) - La transformation des minéraux argileux dans la sédimentation. Etude sur les argiles du Trias. *Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, n° 23, 202 p.

LUCAS J. et TRAUTH N. (1965) - Etude du comportement des montmorillonites à haute température. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 18, p. 191-216.

LUCAS J. et ATAMAN G. (1968) - Mineralogical and geochemical study of clay mineral transformations in the sedimentary triassic Jura basin (France). *Clays and Clay Min.* (16th Nat. Conf., 1967), 5, p. 365-372.

MAC EWAN D.M.C. (1951) - The montmorillonite minerals (montmorillonoids). In : G.W. BRINDLEY (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. *Miner. Soc.* London, p. 86-137.

MAC EWAN D.M.C. (1956) - A study of an interstratified illite-montmorillonite clay from Worcestershire, England. *Clays and Clay Min.* (4th Nat. Conf., 1955), p. 166-172.

MAC EWAN D.M.C., RUIZ-AMIL A. et BROWN G. (1961) - Interstratified clay minerals. In : G. BROWN (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. *Miner Soc.* London, p. 393-445.

MAC EWAN D.M.C. (1961) - Montmorillonite minerals. In : G. BROWN (ed.), X-ray identification and crystal structure of clay minerals. *Miner. Soc.* London, p. 143-207.

MAC EUEN R.B. (1964) - Dielectrophoretic behaviour of clay minerals. I. Dielectrophoretic separation of clay mixtures. *Clays and Clay Min.* (12th Nat. Conf., 1963) p. 549-556.

MACKENZIE F.T. et GARRELS R.M. (1966) - Silica-bicarbonate balance in the ocean and early diagenesis. *Journ. Sedim. Petrol.*, 36, p. 1075-1084.

MACKENZIE R.C., WALKER G.F. et HART R. (1949) - Illite from Ballater. *Min. Mag.*, 28, p. 704-714.

MÄGDEFRAU E. et HOFMANN U. (1937) - Glimmerartige Mineralien als Tonsubstanzen. *Zeitschr. Krist.*, 98, p. 31-59.

MALLARD E. (1878) - Sur la bravaisite. *Bull. Soc. Fr. Min.*, 1, p. 5.

MANKIN C.J. et DODD C.G. (1963) - Proposed reference illite from the Ouachita Mountains of southeastern Oklahoma. *Clays and Clay Min.* (10th Nat. Conf., 1961), p. 372-379.

MATTE P. (1968) - La structure de la virgation hercynienne de Galice (Espagne). *Géologie Alpine*, 44, p. 157-280.

MAUGUIN C. (1928) - Etude des chlorites au moyen des rayons X. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 186, p. 1852.

MAUGUIN C. (1930) - La maille cristalline des chlorites. *Bull. Soc. Fr. Min. Crist.*, 53, p. 279-299.

MAXWELL D.T. et HOWER J. (1967) - High-grade diagenesis and low-grade metamorphism of illite in the precambrian belt series. *Amer. Min.*, 52, p. 843-857.

MEADE R.H. (1964) - Removal of water and rearrangement of particles during the compaction of clayey sediments. Review. *Geol. Surv. Prof. Paper*, 497-B, 23 p.

MERING J. et GLAESER R. (1953) - Sur le rôle de la valence des cations échangeables dans la montmorillonite. *Bull. Gr. Fr. Argiles*, 5, p. 61-72.

MICHARD A. (1967) - Etudes géologiques dans les zones internes des Alpes cottiennes. Editions du C.N.R.S., Paris, 447 p.

MICHEL P.L., CLARACQ P., LAURIOL E., VERRIEN J.P., COURAUD G. et AUFRERE G. (1959) - Les problèmes pétroliers paléozoïques de la bordure nord du Hoggar. Proc. 5th World Petroleum Congr., New-York, Sect. I, 40, p. 747-785.

MILICI R.G., GREENBERG S.S. et JONES C. (1966) - Paragonite-bearing phyllites in the central Virginia Piedmont. *Southeastern Geology*, 7, p. 111-120.

MILLOT G. (1949) - Relations entre la constitution et la genèse des roches sédimentaires argileuses. Thèse Sci. Nancy et *Géol. Appl. Prospec. Min.*, 2, n° 2, 3, 4, 352 p.

MILLOT G. (1954) - Sur l'existence de roches argileuses composées essentiellement de chlorites. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 238, p. 363-364.

MILLOT G. et PALAUSI G. (1959) - Sur un talc d'origine sédimentaire. *C.R. somm. Soc. Géol. Fr.*, 2, p. 45-47.

MILLOT G. (1964) - Géologie des argiles. Masson et Cie, Paris, 499 p.

MILLOT G., LUCAS J. et PAQUET H. (1966) - Evolution chimique par dégradation et agradation des minéraux argileux dans l'hydrosphère. *Geol. Rundsch.*, 55, p. 1-20.

MILLOT G. (1967) - Les deux grandes voies de l'évolution des silicates à la surface de l'écorce terrestre. *Rev. Questions Sci.*, Bruxelles, 138, p. 335-358.

MILNER H.B. (1962) - Sedimentary petrography. 4th ed. Allen and Unwin, London, 1. Methods, 643 p., 2. Principles and applications, 715 p.

MIYASHIRO A. (1957) - Chlorite of crystalline schists. *Journ. Geol. Soc.* Japan, 63, p. 1-8.

MOBERLY R.Jr., KIMURA H.S. et McKOY F.W. (1968) - Authigenic marine phyllosilicates near Hawaï. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 79, p. 1449-1460.

MONACO A. (1965) - Evolution de quelques sédiments argileux de la Méditerranée occidentale (entre Carthagène et Mostaganem). *Bull. Soc. Géol. Fr.*, 7, p. 521-529.

MORGENSTEIN M. (1967) - Authigenic cementation of scoriaceous deep-sea sediments west of Society ridge, south Pacific. *Sedimentology*, 9, 2, p. 105-118.

MOSSLER J.H. et HAYES J.B. (1966) - Ordovician potassium bentonites of Iowa. *Journ. Sedim. Petrol.*, 36, p. 414-427.

MUFFLER L.J.P. et WHITE D.E. (1969) - Active metamorphism of Upper Cenozoic sediments in the Salton Sea. geothermal field and the Salton trough, Southeastern California. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 80, p. 157-182.

MÜLLER G. (1961) - Die rezente Sedimente im Golf vor Neapel. *Beitr. Min. Petr.*, 8, p. 1-20.

MÜLLER G. (1963) - Zur Kenntnis dioktaedrischer Vierschicht-Phyllosilikate. Sudoit Reihe der Sudoit-Chlorit-Gruppe. Intern. Clay Conf., 1, p. 121-130.

MÜLLER G. (1964) - Sediment-Petrologie. Teil I : Methoden der Sediment-Untersuchung. Schweizerbart, Stuttgart, 303 p.

MÜLLER G. (1967) - Sudoit ("dioktaedrischer Chlorit", "Al-Chlorit") in Cornbergersandstein von Cornberg (Hessen). *Contr. Min. Petr.*, 14, p. 176-189.

MÜLLER G. (1967) - Methods in sedimentary petrology. Schweizerbart, Stuttgart, 283 p.

MÜLLER G. (1967) - Ergebnisse der wissenschaftlichen Kern-Bohrung Ur-Federsee 2. Mineralogie der Sediments. *Oberrhein. Geol. Abh.*, 16, p. 90-94.

MURRAY H.H. et SAYYAB A.S. (1955) - Clay minerals studies of some recent marine sediments off the North Carolina Coast. *Clays and Clay Min.* (3d Nat. Conf., 1954), p. 430-441.

NAGELSCHMIDT G. (1937) - X-ray investigation on clays. *Zeitschr. Krist.*, 97, p. 514-521.

NAGELSCHMIDT G. (1944) - X-ray diffraction experiments on illite and bravaisite. *Min. Mag.*, 27, p. 59-61.

NEATHERY T.L. (1965) - Paragonite pseudomorphs after kyanite from Turkey Heaven Mountain, Cleburne Country, Alabama. *Geol. Surv. Alabama*, 12, p. 718-723.

NELSON B.W. et ROY R. (1954) - New data on the composition and identification of chlorites. *Clays and Clay Min.* (2d Nat. Conf., 1953), p. 335-348.

NELSON B.W. (1956) - The illites from some northern Ohio shales. *Clays and Clay Min.* (4th Nat. Conf., 1955), p. 116-124.

NEWNHAM R.E. et BRINDLEY G.W. (1956) - The crystal structure of dickite. *Acta Cryst.*, 9, p. 759-764.

NEWNHAM R.E. et BRINDLEY G.W. (1961) - A refinement of the dickite structure and some remarks on polymorphism in kaolin minerals. *Min. Mag.*, 32, p. 683-704.

NICOLAS J. (1956) - Contribution à l'étude géologique et minéralogique de quelques gisements de kaolin bretons. Thèse Sci. Paris, 254 p.

NOLL W. (1936) - Uber die Bildungsbedingungen von Kaolin, Montmorillonit, Pyrophyllit und Analcim. *Min. Petr. Mitt.*, 48, p. 210-247.

NORIN E. (1953) - Occurence of authigenous illitic mica in the sediments of the central Thyrrenian Sea. *Bull. Geol. Inst. Upsala*, 34, p. 279-284.

NUCKOLLS M.J. et FULLER R.K. (1966) - Sieve analysis of particles smaller than 44 microns in diameter. *Soil Sci.*, 102, p. 292-295.

OINUMA K. et KOBAYASHI K. (1966) - Quantitative study of clay minerals in some recent marine sediments and sedimentary rocks from Japan. *Clays and Clay Min.* (14th Nat. Conf., 1965), p. 209-220.

OLIVIER J.P. et SENNETT P. (1967) - Electrokinetic effects in kaolin-water systems. 1. The measurement of electrophoretic mobility. *Clays and Clay Min.* (15th Nat. Conf., 1966), p. 345-356.

ORCEL J. (1927) - Recherches sur la composition chimique des chlorites. *Bull. Soc. Fr. Min. Crist.*, 50, p. 75-426.

ORCEL J., CAILLERE S. et HENIN S. (1950) - Nouvel essai de classification des chlorites. *Min. Mag.*, 29, p. 329-340.

OSIPOV J.B. (1965) - Comportement des suspensions argileuses dans un champ magnétique. *Vest. Moskov. Univ. Geol.*, 5, p. 81-87.

OSIPOV J.B. (1968) - Etude des sédiments, pâtes et suspensions argileuses dans un champ magnétique. *Izd. Moskov. Univ.* p. 1-160.

OTALORA G. (1964) - Zeolites and related minerals in cretaceous rocks of east-central Puerto-Rico. *Amer. Journ. Sci.*, 262, p. 726-734.

OULIANOFF N. (1965) - Reflexions sur la diagenèse des sédiments marins. *Ecl. Geol. Helv.*, 58, p. 1005-1017.

PACKHAM G.H. et CROOK K.A.W. (1960) - The principle of diagenetic facies and some of its implications. *Journ. Geol.*, 68, p. 392-407.

PACQUET A. (1969) - Analcime et argiles diagénétiques dans les formations sédimentaires du bassin d'Agadès (République du Niger). Thèse Doct. Ing. Fac. Sci. Strasbourg, 188 p., et *Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, (à l'impression).

PAQUET H. (1969) - Evolution géochimique des minéraux argileux dans les altérations et les sols des climats méditerranéens et tropicaux à saisons contrastées. Thèse Strasbourg, et *Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, (à l'impression).

PARHAM W.E. (1966) - Lateral variations of clay mineral assemblages in modern and ancient sediments. 2d Intern. Clay Conf., Jerusalem, I, p. 135-146.

PAULING L. (1930) - The structure of the chlorites. *Proc. Nat. Acad. Sci.* U.S.A., 16, p. 578-582.

PEDRO G. (1965) - La classification des minéraux argileux. *Ann. Agronomiques*, 16 n° hors série 1, 108 p.

PERELMAN A.I. (1967) - Geochemistry of epigenesis. Plenum Press, New-York, 266 p.

PERRODON A. et TEISSERENC P. (1968) - Le Paléozoïque de la bordure nord du Hoggar et des Eglabs. *Zeitschr. Deutsch. Geol. Ges.* 117, p. 448-459.

PETERS T. et WUTRICH H. (1963) - Magnetische Trennung von Tonmineralien. *Ecl. Geol. Hely.*, 56, p. 113-117.

PETTIJOHN F.J. (1949, 1957) - Sedimentary rocks. Harper, New-York. 1° éd. 526 p., 2° éd. 718 p.

PHILIPPI G.T. (1965) - On the depth, time and mechanism of petroleum generation. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 29, p. 1021-1050.

PRAY L.C. et MURRAY R.C. (ed.) (1965) - Dolomitization and limestone diagenesis. A symposium. *Soc. Econ. Pal. Miner., Spec, Publ.*, 13, 180 p.

POUSTOVALOV L.V. (1933) - Les faciès géochimiques et leur signification pour la géologie générale et appliquée. *Probl. Soviet Geol.*, 1.

POUSTOVALOV L.V. (1940) - Pétrographie des roches sédimentaires. Gestoptekhizdat, Moscou, 2 volumes.

POUSTOVALOV L.V. (1955) - Über sekundäre Veränderungen der Sedimentgesteine. *Geol. Rundsch.*, 43, p. 535-550.

POWERS M.C. (1959) - Adjustement of clays to chemical change and the concept of equivalence level. *Clays and Clay Min.* (6th Nat. Conf., 1957), p. 309-326.

RADCZEWSKI O.E. (1951) - Über den Mineralbestand des feuerfesten Schiefertons von Neurode in Schlesien. *Ber. Deutsch. Keram. Ges.*, 28, p. 119-138.

RAMBERG H. (1952) - The origin of metamorphic and metasomatic rocks. A treatise on recrystallization and replacement in the earth's crust. The Univ. of Chicago Press, Chicago, 317 p.

RANKAMA K. et SAMAMA T.G. (1950) - Geochemistry. The Univ. of Chicago Press, Chicago, 911 p.

RATEEV M.A. (1963) - Regularities in the spatial distribution of kaolinite in marine sediments. *Dokl. Akad. Nauk* S.S.S.R., 141, p. 1271-1274.

RAYMAHASHAY B.C. (1968) - A geochemical study of rock alteration by hot springs in the Paint Pot Hill area, Yellowstone Park. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 32, p. 499-522.

READ H.H. et WATSON J. (1962) - Introduction to geology. Mac Millan, London, 267 p.

REESMAN A.L. et KELLER W.D. (1967) - Chemical composition of illite. *Journ. Sedim. Petrol.*, 37, p. 592-596.

REYNOLDS R.C. (1963) - Potassium-rubidium ratios and polymorphism in illites and microclines from the clay size fractions of proterozoic carbonate rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 27, p. 1097-1112.

REYRE D. (1966) - Particularités géologiques des bassins côtiers de l'Ouest africain. Assoc. Ser. Géol. Africains, Symposium New-Dehli (1964), p. 253-304.

RICH C.I. (1968) - Hydroxy interlayers in expansible layer silicates. *Clays and Clay Min.* (16th Nat. Conf., 1967), 1, p. 15-30.

RICHARDSON W.A. (1921) - The relative age of concretions. *Geol. Mag.*, 58, p. 114-124.

RICHWIEN J., SCHUSTER A., TEICHMULLER R. et al. (1963) - Überblick über das Profil der Bohrung Münsterland 1. *Fortschr. Geol. Rheinld. Westf.*, 11, p. 9-18.

RIVIERE A. (1946) - Sur les argiles micacées (illites). *C.R. Acad. Sci.* Paris, p. 1445-1446.

RODRIGUEZ-GALLEGO M. et ALIAS-PEREZ L.J. (1965) - A regular mixed layer mica-beidellite. *Clay Minerals*, 6, 2, p. 119-122.

ROMERO A. et SABATIER G. (1962) - L'élargissement des raies 00*l* de diffraction de l'illite dans les formations sédimentaires. Application à la stratigraphie des environs d'Amélie-les-Bains (Pyrénées Orientales). *C.R. Acad. Sci.* Paris, 254, p. 889-891.

ROSS C.S. et SHANNON E.V. (1926) - Minerals of bentonite and related clays and their physical properties. *Journ. Amer. Ceram. Soc.*, 9, p. 77-96.

ROSS C.S. et KERR R.F. (1931) - The clay minerals and their identity. *Journ. Sedim. Petrol.*, 1, p. 59.

ROSS C.S. et KERR P.F. (1931) - The kaolin minerals. *Geol. Surv. Prof. Paper*, 165-E, p. 151-170.

ROSS C.S., KERR P.F. (1934) - Halloysite and allophane. *Geol. Surv. Prof. Paper.* 185-G, p. 135-148.

ROSS C.S. (1945) - Minerals and mineral relationships on the clay minerals. *Journ. Amer. Ceram. Soc.*, 28, p. 173-183.

ROSS C.S. et HENDRICKS S.B. (1945) - Minerals of the montmorillonite group. *Geol. Surv. Prof. Paper*, 205-B, p. 23-79.

ROSS C.S. (1960) - Review of the relationships in the montmorillonite group of clay minerals. *Clays and Clay Min.* (7th Nat. Conf., 1958), p. 225-230.

ROSS M., TAKEDA H. et WONES D.R. (1966) - Mica polytypes : systematic description and identification. *Science*, 151, 3707, p. 191-193.

ROUKHINE L.B. (1961) - Bases de la lithologie. Etude des formations sédimentaires. Gostoptekhizdat, 780 p., Trad. B.R.G.M. 3783, 4 volumes, 880 p.

ROUTHIER P. (1966) - Contre la prolifération "cancériforme" : les synthèses étagées, la reflexion sur la méthode. Appel aux auteurs et aux éditeurs. *Mineralium Deposita*, 1, p. 6-15.

ROY D.M. et ROY R. (1955) - Synthesis and stability of minerals in the system MgO-Al_2O_3-SiO_2-H_2O. *Amer. Min.*, 40, p. 147-178.

RUMEAU J.L. et KULBICKI G. (1966) - Evolution des minéraux argileux dans les dolomies et les calcaires poreux du Crétacé supérieur de la plateforme d'Aquitaine. 2d Intern. Clay Conf., Jerusalem, 2, p. 103-117.

SABATIER G. (1965) - Transformations expérimentales de minéraux argileux. Rap. d'activité, Convention "diagenèse" à la D.G.R.S.T., 8 p.

SAGON J.P. (1967) - Sur la présence de paragonite dans les schistes dinantiens du bassin de Châteaulin (région orientale, environs de Merléac, Côtes-du-Nord). *C.R. Soc. Géol. Fr.*, 6, p. 249-251.

SAPIN S. (1967) - Principaux résultats géologiques des travaux d'exploration réalisés par la Société Nationale des Pétroles d'Aquitaine dans le sud-ouest du bassin de Paris. *Bull. Soc. Géol. Fr.*, 9, p. 327-354.

SAUCIER H., MILLOT G. et JOST R. (1959) - Les ignimbrites permiennes de la région du Nideck (Vosges-Alsace). *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 12, p. 33-48.

SCHEERE J. (1963) - Etude micrographique de l'évolution diagénétique des roches du Houiller belge. *Bull. Soc. Géol. Belge*, 72, p. 295-370.

SCHERP A. (1963) - Die Petrographie der paläozoischen Sandsteine in der Bohrung Münsterland 1 und ihre Diagenese in Abhängigkeit von der Teufe. *Fortschr. Geol. Rheinld. Westf.*, 11, p. 251-282.

SCHLOCKER J. et VAN HORN R. (1958) - Alteration of volcanic ash near Denver, Colorado. Journ. Sedim. Petrol., 28, p. 31.

SCHMIDT V. (1965) - Facies, diagenesis and related reservoir properties in the Gigas beds (upper Jurassic), northwestern Germany. In : Dolomitization and Limestone diagenesis. A symposium. *Soc. Econ. Pal. Miner., Spec. Publ.*, 13, p. 124-168.

SCHROEDER R.J. et HAYES J.B. (1968) - Dickite and kaolinite in pennsylvanian limestones of southeastern Kansas. *Clays and Clay Min.* (16th Nat. Conf., 1967), 16, p. 41-49.

SCHUCHERT C. (1920) - Diagenesis in sedimentation. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 31, p. 425-432.

SCHULLER A. (1961) - Die Druck-, Temperatur-, und Energiefelder der Metamorphose. *Neues Jb. Min., Abh.*, 96, p. 250-290.

SCHVETSOV M.S. (1934) - Pétrographie des roches sédimentaires. Gosgeoltekhizdat, Moscou.

SEDGWICK A. (1835) - Remarks on the structure of large masses and specially on the chemical changes procuced in the aggregation of stratified rocks during different periods after their deposition. *Geol. Soc. London Trans.*, p. 461-486.

SEGALEN R. (1968) - Note sur une méthode de détermination des produits minéraux amorphes dans certains sols à hydroxydes tropicaux. Cahiers O.R.S.T.O.M., Pédol., 6, p. 105-126.

SERDYUCHENKO D.P. (1953) - Chlorites, their chemical constitution and classification. *Trudy Inst. Geol. Nauk* S.S.S.R., 140.

SHEPARD F.P. et MOORE D.G. (1955) - Central Texas coast sedimentation ; characteristics of sedimentary environment, recent history and diagenesis. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 39, p. 1463-1593.

SHIMODA S. et SUDO T. (1960) - An interstratified mixture of mica clay minerals. *Amer. Min.*, 45, p. 1069-1077.

SHIROZU H. et BAILEY S.W. (1965) - Chlorite polytypism : III. Crystal structure of an orthohexagonal iron chlorite. *Amer. Min.*, 50, p. 868-885.

SHOVER E.F. (1964) - Clay mineral environment relationships in Cisco (U. Penn.) clays and shales, North Central Texas. *Clays and Clay Min.* (12th Nat. Conf., 1963), p. 431-443.

SHUTOV V.D. et DOLMATOVA T.V. (1961) - Modifications de la kaolinite dans les roches terrigènes lors de l'épigenèse en profondeur. *Acta Univ. Carol.*, Prague, Geol. Suppl., 1, p. 393-415.

SHUTOV V.D., ALEXANDROVA V.A. et LOSIEVSKAIA S.A. (1966) - Genetic interpretation of polymorphism in minerals of the kaolinite group in sedimentary rocks. In : Physical methods of investigation of minerals of sedimentary rocks. *Akad. Nauk* S.S.S.R., Moscou, p. 109-122.

SIEGEL F.R., PIERCE J.W., URIEN C.M. et STONE I.C. (1968) - Clay mineralogy in the estuary of the Rio de la Plata, South America. 23d Intern. Geol. Congr. Abstracts, p. 245-246.

SIEVER R. (1959) - Petrology and geochemistry of silica cementation in some pennsylvanian sandstones. *Soc. Econ. Pal. Miner., Spec. Publ.*, 7, p. 55-79.

SIEVER R.S. (1962) - Silica solubility 0-200°, and the diagenesis of siliceous sediments. *Journ. Geol.*, 70, p. 127-150.

SIMANOVICH I.M. (1966) - Epigenesis and initial metamorphism of Shoksha quartzite sandstones. *Akad. Nauk* S.S.S.R., *Geol. Inst. Trudy.*, 153, 120 p.

SITTLER C. et DEMANGEON P. (1963) - Les minéraux argileux indicateurs de faciès dans le Paléogène languedocien. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 16, p. 213-226.

SITTLER C. (1965) - Le Paléogène des fossés rhénan et rhodanien. Etudes sédimentologiques et paléoclimatiques. *Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 24, 392 p.

SLAUGHTER M. et MILNE I.H. (1960) - The formation of chlorite-like structures from montmorillonite. *Clays and Clay Min.* (7th Nat. Conf., 1958), p. 114-125.

SMITH J.V. et YODER H.S. (1956) - Experimental and theorical studies of the mica polymorphs. *Min. Mag.*, 31, p. 209-235.

SMITH R.E. (1969) - Zones of progressive regional burial metamorphism in part of the Tasman geosyncline, Eastern Australia. *Journ. of Petrology*, 10, p. 144-163.

SMITHSON F. et BROWN G. (1954) - The petrography of dickite sandstone in North Wales and northern England. *Geol. Mag.*, 91, p. 177-188.

SMITHSON F. et BROWN G. (1957) - Dickite in northern England and North Wales. *Min. Mag.*, 31, p. 381-391.

SMOOT T.W. (1960) - Clay mineralogy of the pre-pennsylvanian sandstones and shales of the Illinois basin. I. Relation of permeability to clay mineral suites. *Illinois St. Geol. Surv.*, 286, 20 p.

SMOOT T. W. (1960) - Clay mineralogy of the pre-pennsylvanian sandstones and shales of the Illinois basin. II. Relation between clay mineral suites of oil-bearing and non-oil-bearing rocks. *Illinois St. Geol. Surv.*, 287, p. 1-14.

SMOOT T. W. (1960) - Clay mineralogy of the pre-pennsylvanian sandstones and shales of the Illinois basin. III. Clay minerals of some Chester formations. *Illinois St. Geol. Surv.*, 293, p. 1-19.

STADLER G. (1963) - Petrographie und Diagenese der oberkarbonischen Tonsteine in der Bohrung Münsterland 1. *Fortschr. Geol. Rheinld. Westf.*, 11, p. 283-292.

STARKE R. (1968) - Tonmineralogisches Normalprofil am Nordrand der Böhmischen Masse. *Geologie*, 17, p. 820-834.

STEINICKE K. (1966) - Die Charakterisierung der Diagenese im Bereiche der tonhaltigen klastischen Sedimente durch Faziesreaktionen im Sinne von Eskola. *Chemie der Erde*, 25, p. 153-168.

STEVAUX J. et KULBICKI G. (1966) - Sur la salinité de la mer silurienne au Sahara. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 19, p. 205-212.

STEVAUX J. (1967) - Etude géochimique et sédimentologique des Fermoy Series de l'Eromanga Sub-basin (Queensland, Australie). *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 1, p. 99-109.

STOLL J. M., LUCAS J., MILLOT G. et WEY R. (1964) - Contribution à l'étude des méthodes pratiques d'examen aux rayons X des minéraux phylliteux. Influence du mode de séchage et de la saturation par des ions potassium. *Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, 17, p. 235-246.

STRAKHOV N. M. (1953) - Diagenesis of sediments and its significance for sedimentary ore formation. *Izves. Akad. Nauk* S. S. S. R., Geol. Ser., 5, p. 12-49. Trad. anglaise : Ass. Tech. Serv. Ltd., East Orange, New-Jersey, Transl. RI-761 (nov. 56), 39 p.

SRAKHOV N. M. (1954) - Diagenèse des dépôts marins et lacustres actuels et leur transformation en roches sédimentaires. In : Formation des dépôts dans les bassins actuels, *Akad. Nauk* S. S. S. R., Moscou.

STRAKHOV N. M. (1957) - Méthodes d'étude des roches sédimentaires. 2 volumes. Moscou. Trad. : An. Serv. Inform. Géol. B. R. G. M., 35, 535 p.

STRAKHOV N. M. (1958) - Schéma de la diagenèse des dépôts marins. *Ecl. Geol. Helv.*, 51, p. 761-767.

SUDO T. et KODAMA H. (1957) - An aluminian mixed-layer mineral of montmorillonite-chlorite. *Zeitschr. Krist.*, 109, p. 379-385.

SUDO T., HAYASHI H. et SHIMODA S. (1962) - Mineralogical problems of intermediate clay minerals. *Clays and Clay Min.* (9th Nat. Conf., 1960), p. 378-392.

SUDO T., SATO M. (1966) - Dioctahedral chlorite. 2d Intern. Clay Conf., Jerusalem, I., p. 33-40 ; II., p. 25-27.

SUJKOWSKI Z. L. (1958) - Diagenesis. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 42, p. 2692-2717.

SWALLOW J. C. et CREASE J. (1965) - Hot salty water at the bottom of the Red Sea. *Nature*, 205, 4967, p. 165-166.

SZADECZKY-KARDOSS E., BARDOSSY G., FUERST I., PESTY I., KLIBURSZKY B., TOMOR E. et TOMSCHEY O. (1968) - On the montmorillonite facies. *Acta Geol. Acad. Sci. Hungar*, 12, p. 61-65.

SZADECZKY-KARDOSS E., KLIBURSZKY B., PESTY L., TOMOR E. et TOMSCHEY O. (1968) - Experimental simulation of rock metamorphism. *Acta Geol. Acad. Sci. Hungar.*, 12, p. 51-60.

TABOADELA M. M. et FERRANDIS V. A. (1957) - The mica minerals. In : R. C. MACKENZIE (ed.), The differential thermal investigation of clays. *Miner. Soc.*, London, p. 165-190.

TAGEEVA N. V. et TIKHOMIROVA M. M. (1962) - Géochimie des eaux interstitielles dans la diagenèse des dépôts marins (d'après l'exemple des dépôts de la mer Caspienne). *Izd. Akad. Nauk* S. S. S. R., Moscou, 1, 246 p. Trad. B. R. G. M. 4286.

TARDY Y. (1969) - Géochimie des altérations. Etude des arènes et des eaux de quelques massifs cristallins d'Europe et d'Afrique, Thèse Strasbourg et *Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr.*, Strasbourg, (à l'impression).

TARR W.A. (1921) - Syngenetic origin of concretion in shale. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 32, p. 373-384.

TAUPITZ K.C. (1954) - Über Sedimentation, Diagenese, Metamorphose, Magmatismus und die Entstehung der Erzlagerstätten. *Chemie der Erde*, 17, p. 104-164.

TAYLOR J.H. (1964) - Some aspects of diagenesis. *Advanc. Sci.* G.B., 20, 87, p. 417-436.

TEICHERT C. (1958) - Concept of facies. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 42, p. 2718-2744.

TEICHERT C. (1965) - Devonian rocks and paleogeography of Central Arizona. *Geol. Surv. Prof. Paper*, 464, 181 p.

TEICHMÜLLER M. et TEICHMÜLLER R. (1954) - Die stoffliche une strukturelle Metamorphose der Kohle. *Geol. Rundsch.*, 42, p. 265-296.

TEICHMÜLLER M. (1967) - Inkohlungsuntersuchungen an kohleführenden Sedimenten des Tertiärs aus dem Oberrhein-Graben nördlich Worms. *Oberrhein. Geol. Agh.*, 16, p. 11-15.

TEICHMÜLLER M. et TEICHMÜLLER R. (1968) - Geological aspects of coal metamorphism. In : D. MURCHISON et T.S. WESTOLL (ed.), Coal and coalbearing strata, Oliver and Boyd, Edinburgh, p. 233-267.

TEODOROVITCH G.I. (1961) - Authigenic minerals in sedimentary rocks. Consultants Bureau, New-York, 120 p.

TERMIER H. et TERMIER G. (1960) - Erosion et sédimentation. Introduction à la géologie générale et à la paléogéographie. Masson et Cie, Paris, 412 p.

TOPKAYA M. (1950) - Recherches sur les silicates authigènes dans les roches sédimentaires. *Bull. Lab. Géol. Minér. Lausanne*, 97, 132 p.

TOWE K.M. (1962) - Diagenesis of clay minerals as a possible source of silica cement in sedimentary rocks. *Journ. Sedim. Petrol.*, 32, p. 26-28.

TOWE K.M. et GRIM R.E. (1963) - Variations in clay mineralogy across facies boundaries in the middle Devonian (Luldlowville), New-York. *Amer. Journ. Sci.*, 261, p. 839-861.

TRAUTH N., PAQUET H., LUCAS J. et MILLOT G. (1967) - Les montmorillonites des vertisols lithomorphes sont ferrifères : conséquences géochimiques et sédimentologiques. *C.R. Acad. Sci.* Paris, 264, D, p. 1577-1579.

TRIPLEHORN D.M. (1967) - Occurence of pure, well crystallized 1M illite in cambro-ordivician sandstone from Rhourde el Baguel field, Algeria. *Journ. Sedim. Petrol.*, 37, p. 879-884.

TSCHERMAK G. (1890-1891) - Die Chloritgruppe. Sitzungsb. Akad. Wissensch. Wien, Cl. Math. Nat., 99, 1, p. 174-266 et 100, 1, p. 29-107.

TWENHOFEL W.H. (1932) - Treatise on sedimentation. 2d edition. William and Wilkins Company, New-York, 926 p. (1ère édition en 1926).

TWENHOFEL W.H. (1950) - Principles of sedimentation. 2d edition. McGraw-Hill, New-York, 673 p. (1ère édition en 1939).

VAN HISE C.R. (1904) - A treatise on metamorphism. *U.S. Geol. Surv. Monogr.* XLVII, 1286 p.

VAN OOSTERWYCK-GASTUCHE M.C. et DELIENS M. (1968) - Sur l'existence d'une chlorite aluminifère au Camp d'Atondo (Maniema, Rép. dém. du Congo). *Bull. Gr. Fr, Argiles*, 20, p. 187-204.

VASSOEVICH N.B. (1962) - Encore une fois sur la désignation de phases et d'étapes de la lithogenèse. *Trudy V.N.I.G.R.I.*, S.S.S.R., 190, p. 220-243.

VATAN A. (1939) - Observations 1) Sur l'existence dans certaines argiles de sels alcalins solubles, 2) Sur la structure des sables argileux. *C.R. Soc. Géol. Fr.*, 9, p. 145-146.

VATAN A. (1954) - Pétrographie sédimentaire. (avec la collaboration de C. FONDEUR et P.E. ROUGE). *Inst. Fr. Pétrole*, Technip, Paris, Réf. 244, 279 p.

VATAN A. (1967) - Manuel de sédimentologie. Technip, Paris, 397 p.

VELDE B. et HOWER J. (1963) - Petrological significance of illite polymorphism in Paleozoic sedimentary rocks. *Amer. Min.*, 48, p. 1239-1254.

VELDE B. (1965) - Phengite micas : synthesis, stability and natural occurence. *Amer. Journ.* Sci., 263, p. 886-913.

VELDE B. (1965) - Experimental determination of muscovite polymorphs stabilities. *Amer. Min.*, 50, p. 436-449.

VELDE B. (1966) - Etude minéralogique d'une éclogite de Fay-de-Bretagne (Loire Atlantique). *Bull. Soc. Fr. Min.*, 89, p. 385-393.

VELDE B. et KORNPROBST J. (1969) - Stabilité des silicates d'alumine hydratés. *Contr. Min. Petr.*, 21, p. 63-74.

VIALON P. (1966) - Etude géologique du massif cristallin Dora-Maira. Alpes cottiennes internes. Italie. *Trav. Labor. Géol. Fac. Sci. Grenoble*, Mém. 4, 282 p.

VLASOV V.V. (1966) - An example of the dependence of epigenetic changes in clay minerals from lithological characteristics of the rocks. *Dokl. Akad. Nauk* S.S.S.R., 170, p. 1174-1176. Transl. : A.G.I., 170 p. 184-186.

WALTHER J. (1893-1894) - Einleitung in die Geologie als historische Wissenschaft. Beobachtungen über die Bildung der Gesteine und ihrer organischen Einschlüsse. Fischer, Iena, 1055 p.

WARSHAW C.M. (1960) - Experimental studies of illites. *Clays and Clay Min.* (7th Nat. Conf., 1958), p. 303-316.

WEAVER C.E. (1953) - Mineralogy and petrology of some ordovician K-Bentonites and related limestones. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 64, p. 921-944.

WEAVER C.E. (1956) - The distribution and identification of mixed-layer clays in sedimentary rocks. *Amer. Min.*, 41, p. 202-221.

WEAVER C.E. (1958) - Geologic signification of argillaceous sediments. I : Origin and significance of clay minerals in sedimentary rocks. II : Clay petrology of upper mississipian-lower pennsylvanian sediments of central United States. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 42, p. 254-309.

WEAVER C.E. (1959) - The clay petrology of sediments. *Clays and Clay Min.* (6th Nat. Conf., 1957), p. 154-187.

WEAVER C.E. (1960) - Possible uses of clay minerals in seach for oil. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 44, p. 1505-1518. et *Clays and Clay Min.* (8th Nat. Conf., 1959), p. 214-227.

WEAVER C.E. (1961) - Clay minerals of the Ouachita structural belt and adjacent foreland. In : The Ouachita System. *The Univ. Texas Publ.*, 6120, Bureau Econ. Geol. Austin, p. 147-160.

WEAVER C.E. (1967) - The significance of clay minerals in sediments. In : B. NAGY et U. COLOMBO (ed.), Fundamental aspects of petroleum geochemistry. Elsevier, 388 p., p. 37-75.

WEAVER C.E. (1968) - Relations of composition to structure of dioctahedral 2/1 clay minerals. *Clays and Clay Min.* (16th Nat. Conf., 1967), p. 51-61.

WEGMANN E. (1951) - Méthodes d'analyse tectonique des socles cristallins. *Archives des Sci.*, Genève, 4, p. 231-237.

WEGMANN E. (1955) - Les ordres de grandeur dans les phénomènes métasomatiques des roches. Colloque de Pétrographie, *Sciences de la Terre*, Nancy, vol. hors série, p. 169-174.

WEGMANN E. (1958) - Das Erbe Werners und Huttons. *Geologie*, 7, p. 531-559.

WEGMANN E. (1962) - L'exposé original de la notion de faciès par A. Gressly (1814-1865). *Sciences de la Terre*, Nancy, 9, p. 83-119.

WEINSCHENK E. (1906) - Grundzüge der Gesteinskunde. I. Allgemeine Gesteinskunde. Herder, Freiburg I. Br., 228 p.

WEIR A.H., NIXON H.L. et WOOD R.D. (1962) - Measurments of thickness of dispersed clay flakes with the electron microscope. *Clays and Clay Min.* (9th Nat. Conf., 1960), p. 419-423.

WELLER J.M. (1959) - Compaction of sediments. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 43, p. 273-310.

WELLER J.M. (1960) - Stratigraphic principles and practice. Harper and Brothers, New-York, 725 p.

WETZEL W. (1923) - Sedimentpetrographie. *Fortschr. Min. Krist. Petr.*, 8, p. 101-198.

WHERRY E.T., ROSS C.S. et KERR P.F. (1929) - Progress in the study of clay minerals. Colloid Symposium, 7, p. 191-195.

WHITE D.E. (1965) - Saline waters of sedimentary rocks. In : YOUNG A. et GALLEY J.E. (ed.), Fluids in subsurface environments. *Mem. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 4, p. 342-366.

WHITEHOUSE U.G. et MAC CARTER R.S. (1958) - Diagenetic modification of clay mineral types in artificial sea-water. *Clays and Clay Min.* (5th Nat. Conf., 1956), p. 81-119.

WILDING L.P. (1965) - A fractionator for medium and fine silt. *Journ. Sedim. Petrol.*, 35, p. 489-518.

WILLIAMS H., TURNER F.J. et GILBERT C.M. (1954) - Petrography. Freeman, San Francisco, 406 p.

WILSON J.H. (1926) - Lithologic character of shale as an index of metamorphism. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 10, p. 625-633.

WILSON M.J., BAIN D.C. et MITCHELL W.A. (1968) - Saponite from the Dalradian meta-limestones of north-east Scotland. *Clay Minerals*, 7, p. 343-349.

WINCHELL A.N. (1936) - Third study of chlorite. *Amer. Min.*, 21, p. 642-651.

WINKLER H.G.F. (1964) - Das T.P. Feld der Diagenese und niedrigtemperierten Metamorphose auf Grund von Mineralreaktionen. *Beitr. Min. Petr.*, 10, p. 70-93.

WINKLER H.G.F. (1965) - Die Genese der metamorphen Gesteine. Springer, Berlin, 218 p.

WINKLER H.G.F. (1968) - Wandel auf dem Gebiet der Gesteinsmetamorphose. *Geol. Rundsch.*, 57, p. 1002-1019.

WOLF K.H. et CONOLLY J.R. (1965) - Petrogenesis and paleoenvironment of limestone lenses in upper devonian red beds of New South Wales. *Palaeog. Paleoclim. Paleoec.*, 1, p. 69-111.

WYART J. et SABATIER G. (1966) - Synthèse hydrothermale de la correnSite. *Bull. Gr. Fr. Argiles*, 18, 13, p. 33-40.

YAPAUDJIAN L. (1964) - Le Dévonien et le Gothlandien gréseux de la hamada de Tinrhert. Rap. inédit C.E.P.

YASHKIN Y.K. (1967) - Upper Proterozoic montmorillonoidal clays in middle portion of pre-Dnester Region. *Soviet Geology*, 2, p. 122-128.

YODER M.S. et EUGSTER H.P. (1954) - Syntheses and stability of the muscovites. *Amer. Min.*, 39, p. 350-351.

YODER H.S. et EUGSTER H.P. (1955) - Synthetic and natural muscovites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 8, p. 225-280.

YOUELL R.F. (1960) - An electrolytic method for producing chlorite-like substances from montmorillonite. *Clay Min. Bull.*, 4, p. 191-195.

ZEN E.A. et ALBEE A.L. (1964) - Coexistent muscovite and paragonite in pelitic schists. *Amer. Min.*, 49, p. 904-926.

ZEN E.A., ROSS M. et BEARTH P. (1964) - Paragonite from Täsh Valley near Zermatt, Switzerland. *Amer. Min.*, 49, p. 183-189.

ZEN E.A. (1967) - Mixed-layer minerals as one-dimensional crystals. *Amer. Min.*, 52, p. 635-660.

ZITTEL K.A. von (1899) - Geschichte der Geologie und Paläontologie bis Ende des 19° Jahrhunderts. München, 868 p.

ZO BELL C.E. (1946) - Studies on redox-potential of marine sediments. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, 30, p. 477-513.

PLANCHE I

PYROPHYLLITE DANS LE SILURO-DEVONIEN DU SAHARA

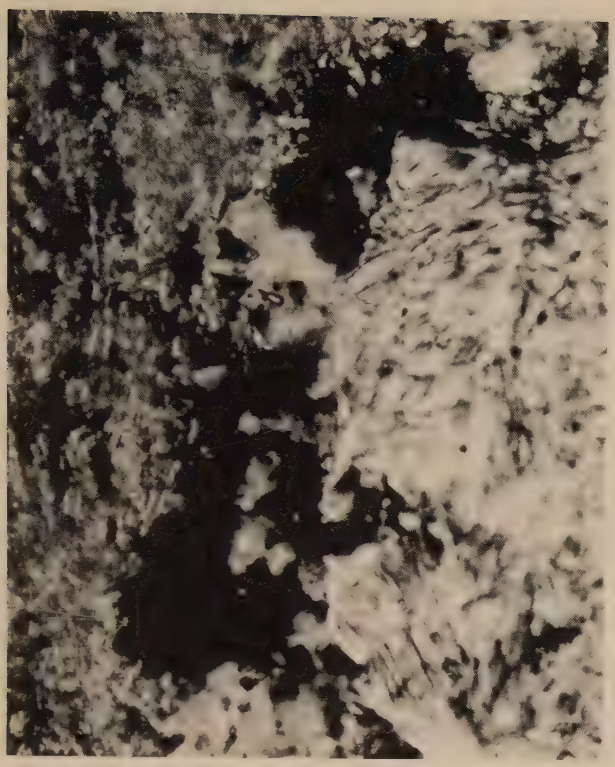
(voir texte pp. 115 et 127)

1. Forage ESA 1 – 2015,5 m. L.P. × 350.
   Argilite charbonneuse dolomitique à débris d'organismes. On observe ici le détail de l'épigénie d'un test calcaire.
   A gauche de la photo : calcite du test
   Au centre, en plus sombre : kaolinite
   A droite, en clair : pyrophyllite (clivages estompés, flexueux, aspect en houppe)

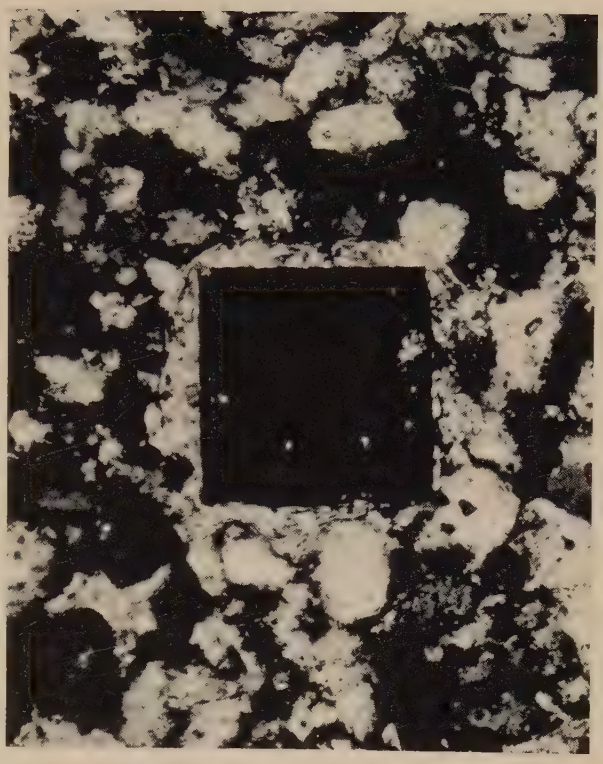
2. Siltstone de la formation d'Oued Ali (Ougarta). Ech. 90 111 L.P. × 150
   Un cristal cubique de halite, au centre du champ, est entouré d'un manchon de pyrophyllite.

3. Argilite de la formation d'Oued Ali (Ougarta). Ech. 90 106 L.P. × 100.
   La pyrophyllite y forme des amas oeillés au sein d'une matrice argileuse microplissée.

4. Forage Assjmi 1 – 2059,5 m. L.P. × 350.
   Siltstones argilo-micacés où les micas détritiques (muscovites principalement) sont épigénisés par chlorite et pyrophyllite. La chlorite apparaît en sombre en bas à droite du cliché. La pyrophyllite forme la masse claire au centre du champ. Les deux minéraux se mêlent intimement.



1



2

3

4

Planche I

PLANCHE II

METAMORPHISME DES "TERRES NOIRES" JURASSIQUES

(voir texte p. 157)

1 et 2 : microscope optique. L.N. × 35
3 et 4 : microscope électronique. × 17 000
1 et 3 : terres noires non métamorphiques
2 et 4 : terres noires métamorphisées

1. Veynes. Ech. A 49. Marne à débit conchoïdal. Structure isotrope. On voit ici du quartz, de la calcite et des oxydes de fer sur un fond argilo-calcaire.

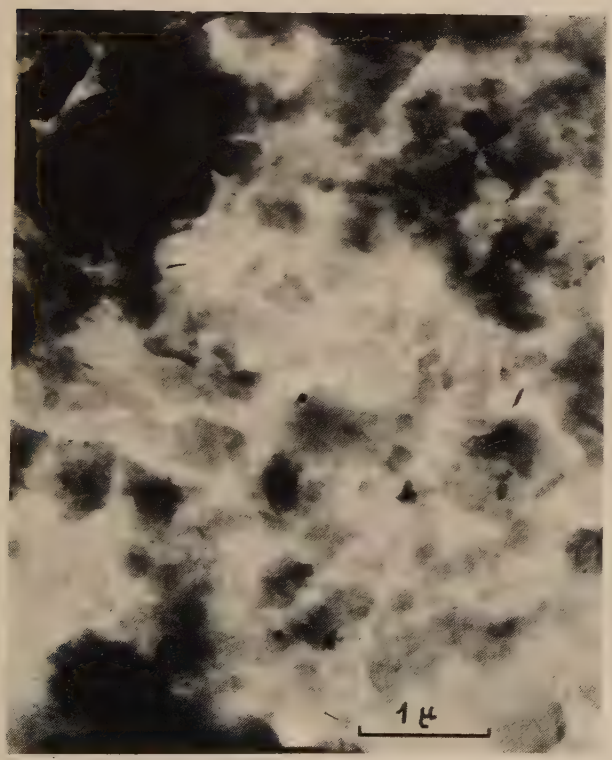
2. Serre-Ponçon. Ech. A 55. Calcschiste noir induré à schistosité très marquée. On voit ici les mêmes minéraux que sur le cliché précédent mais ils ont recristallisé dans le plan de schistosité.

3. Die. Ech. Aa 6. Les terres noires non métamorphiques, qui sont des marnes, présentent des minéraux argileux de petite taille en agrégats floconneux aux contours diffus.

4. Barcelonnette. Ech. A 56. Les terres noires métamorphiques sont des schistes qui n'ont plus les propriétés des argiles. Les argiles sont devenues des micas et chlorites de grande taille. La figure montre les contours hexagonaux d'un minéral opaque (probablement une chlorite) et les effets de moiré fréquents chez les minéraux micacés bien ordonnés.

1

2



3

4

Planche II

TABLE DES MATIÈRES

Pages

AVANT-PROPOS 3

INTRODUCTION 5

1ère PARTIE

LA NOTION DE DIAGENESE

CHAPITRE 1 - LES TEMPS ANCIENS 9

I - La notion de diagenèse avant la lettre 9
II - La diagenèse de C. W. von GÜMBEL (1868, 1888) 9
III - J. WALTHER (1893 - 1894) : le fondateur 10

CHAPITRE 2 - LA DIAGENESE DANS LA LITTERATURE SCIENTIQUE ALLEMANDE ... 13

I - Où commence la diagenèse : océanographes et sédimentologistes 13

1 - ANDREE (1909 - 1924) 13
2 - L'halmyrolyse de HUMMEL (1922) 13
3 - La metharmose de KESSLER (1922) 14
4 - C. W. CORRENS 15

II - Où finit la diagenèse : pétrographes et minéralogistes 15

1 - Les données des forages profonds 16
2 - La pétrographie des charbons et des minerais 16
3 - L'étude des paragenèses et la pétrographie expérimentale 16

III - Conclusion 17

CHAPITRE 3 - LES TRAVAUX RUSSES DANS LE DOMAINE DE LA DIAGENESE 19

I - Les premiers traités modernes : FERSMAN, SCHVETSOV, POUSTOVALOV .. 19

II - Les travaux récents 21

1 - Les sédiments récents 21

a) La diagenèse de la matière organique 21
b) Le rôle de l'eau interstitielle dans la diagenèse 21
c) La notion de "syngenèse" 22
d) La limite "sédimentogenèse-diagenèse" 22

2 - Les sédiments anciens 23

III - Conclusion 24

Pages

CHAPITRE 4 - LA DIAGENESE DANS LA LITTERATURE SCIENTIFIQUE DE LANGUE FRANCAISE 25

I - Le traité de HAUG (1907) 25

II - L'influence de Lucien CAYEUX 26

III - Les tendances actuelles 27

1 - L'océanographie 27
2 - Les recherches pétrolières et houillères 27
3 - L'étude des argiles 27

CHAPITRE 5 - LES AUTEURS DE LANGUE ANGLAISE 29

I - La période ancienne : avant 1914 29

II - La période de transition : entre deux guerres 30

1 - La transformation des shales en slates 30
2 - L'origine des concrétions 30

III - La généralisation du terme "diagenesis" 30

1 - Limite supérieure 31
2 - Limite inférieure 31

IV - Les conceptions récentes (1942, 1966) 31

1 - KRUMBEIN (1942, 1947) 31
2 - Les traités classiques depuis 1950 32
3 - Les synthèses 34

a) SUJKOWSKI (1958) 34
b) PACKHAM et CROOK (1960) 34
c) GLOVER (1962) 35
d) TAYLOR (1964) 35
e) FAIRBRIDGE (1967) 35

4 - La limite supérieure : "early diagenesis" 35
5 - La limite inférieure : "late diagenesis" 36
6 - Le recueil de LARSEN et CHILINGAR (1967) 37
7 - La silice dans la diagenèse (DAPPLES 1967) 37
8 - La diagenèse des calcaires (CHILINGAR, BISSELL et WOLF, 1967) 37
9 - La diagenèse des minéraux argileux 38

LA NOTION DE DIAGENESE : RESUME ET CONCLUSION 43

1 - L'accord tend à se réaliser sur la notion de diagenèse 43
2 - Les recherches en cours portent essentiellement sur les zones frontières 44

a) Frontière "sédimentation-diagenèse" 44
b) Frontière "diagenèse-métamorphisme" 44
c) Frontière "diagenèse-altération superficielle" 44

2ème PARTIE

METHODES EXPERIMENTALES

I - La densité et la porosité des roches 45

1 - Densité de la roche pulvérisée : δ 45
2 - Densité de la roche globale : d 45
3 - Calcul de la porosité 46
4 - La méthode de séchage 46
5 - Le paraffinage 46

Pages

II - L'extraction de la fraction argileuse 47

1 - Extraction de petites quantités pour la confection des agrégats orientés.. 47
2 - Extraction de quantités plus importantes pour les besoins de l'analyse chimique, de l'analyse thermique différentielle ou de la diffractométrie (poudres) 47

III - La séparation de fractions monominérales 48

1 - Cas général 48
2 - Cas des granulométries comprises entre 50 et 2μ (silts) 48
3 - Cas des minéraux argileux 49

IV - Microscopie électronique 49

V - Diffraction des rayons X 49

1 - Appareillage 49

a) Enregistreur PHILIPS 49
b) Enregistreur X-Y HEWLETT-PACKARD 49

2 - Diffractogrammes de poudres désorientées 50

a) Confirmation des déterminations faites sur des agrégats orientés 50
b) Mesure précise de d(060) 50
c) Mesure de l'intensité relative des pics (001) 50
d) Détermination des polymorphes des minéraux micacés 50

3 - Préparation et traitement des agrégats orientés 50

a) Dépôt orienté par sédimentation 50
b) Pâte orientée par étalement 51
c) Traitements 51

4 - Mesure de la cristallinité de l'illite 51

VI - Analyse chimique des constituants minéraux majeurs 53

1 - La perte au feu 53
2 - Si, Al, Mg, Ca, Fe, Mn, Ti 53
3 - Les alcalins Na et K 53

3ème PARTIE

ETUDE DE QUELQUES SERIES SCHISTEUSES D'EUROPE ET D'AFRIQUE

CHAPITRE 1 - LES FORAGES DE LOGBABA. (Bassin de Douala, Cameroun) 57

I - Histoire géologique du bassin de Douala 57

II - La série traversée par les forages de Logbaba 62

III - Données pétrographiques 63

1 - L'analyse par comptage de point des faciès gréseux 63
2 - L'altération diagénétique des micas détritiques 64

IV - Les phénomènes de compaction 64

V - Les minéraux argileux 64

1 - La montmorillonite 66
2 - Les interstratifiés gonflants 66
3 - L'illite 69
4 - La chlorite 69
5 - La kaolinite 69
6 - La dickite 69
7 - Microscopie électronique 70
8 - Diagenèse expérimentale 71

Pages

VI - La chimie minérale 72

1 - Composition chimique de la roche totale 72
2 - Composition chimique de la fraction fine 73
3 - La capacité d'échange cationique des argiles 74
4 - La composition chimique des solutions interstitielles 77
5 - Géochimie isotopique 78

VII - La matière organique 78

VIII - Conclusion partielle à l'étude des forages de Logbaba 80

1 - Nature de la série sédimentaire 80
2 - Facteurs de diagenèse 80
3 - Variations diagénétiques observées 81

CHAPITRE 2 - LE BASSIN DE FORT POLIGNAC (Sahara) 83

I - Le cadre géologique du bassin de Polignac 83

II - Les résultats analytiques des échantillons de forage 85

1 - Le forage d'Oudoumé 86
2 - Le forage d'Ouan Fidjidjéné 88
3 - Le forage d'Ouine Eslak 88
4 - Le forage de Nord Alrar 88
5 - Le forage de Tifist 92
6 - Le forage de Tesselit 93
7 - Le forage d'Irarraren 93
8 - Le forage de Bourarhet 93

III - Vue d'ensemble sur la minéralogie des argiles 93

1 - L'Ordovicien 93
2 - Le Silurien 97
3 - Le Dévonien 98
4 - Le Carbonifère 98
5 - Conclusion 98

IV - La recristallisation de l'illite en profondeur 99

V - La carbonification de la matière organique 102

1 - Le pouvoir réflecteur des particules charbonneuses 102
2 - Le "carbon ratio" 103

VI - Les phénomènes de compaction 103

VII - Résumé des principaux faits relatifs au bassin de Polignac 105

1 - Les sédiments paléozoïques dans le bassin de Polignac 105
2 - Les facteurs de l'évolution diagénétique 105
3 - Les résultats de la diagenèse d'enfouissement 106

a) La matière organique 106
b) La compaction 106
c) La fermeture de l'illite 106

CHAPITRE 3 - LE TRIAS GRESEUX DANS LE SAHARA DU NORD-EST 107

I - Le forage de Pa 1 107

1 - Minéralogie de la fraction argileuse 107
2 - Evolution diagénétique et géochimie 109

II - Le forage d'Oulougga OA 1 bis 111

1 - La lithologie 111
2 - Les minéraux argileux 111

Pages

a) La chlorite 111
b) L'illite 111

3 - La diagenèse des minéraux argileux 111

III - Conclusions 111

CHAPITRE 4 - LE FORAGE D'ASSEJMI (Bassin de Tindouf, Sahara occidental) 113

I - Les séries traversées par le forage 113

II - Les gradients physiques 115

1 - Température 115
2 - Pression 115
3 - Compaction des argiles 115

III - Les gradients minéralogiques 115

1 - La pyrophyllite 115
2 - L'illite et les interstratifiés illite-montmorillonite 115
3 - La chlorite 116
4 - La kaolinite 118

IV - Les gradients chimiques 118

Résumé de l'étude du forage d'Assejmi 119

1 - Résultats de la diagenèse d'enfouissement 119
2 - Variations minéralogiques indépendantes de la diagenèse 119

CHAPITRE 5 - LE FORAGE D'ADRAR ZOUGAR (Anti-Atlas marocain) 121

I - Les minéraux argileux 121

1 - L'illite 123
2 - La chlorite 124
3 - La pyrophyllite 124

II - Données géochimiques 124

III - Discussion 125

1 - La diagenèse d'enfouissement 125
2 - Le métamorphisme hercynien 125
3 - Les intrusions doléritiques 125

CHAPITRE 6 - LE SILURO-DEVONIEN A PYROPHYLLITE AU SAHARA 127

I - Introduction 127

II - Localisation 127

1 - Répartition géographique et cadre structural 127
2 - Répartition stratigraphique 129
3 - Puissance des formations 130

III - Etude pétrographique 130

1 - Les argilites charbonneuses 130
2 - Les argilites silteuses micacées 131
3 - Les siltstones 131
4 - Les argilites schisteuses 131
5 - Les calcaires 132

IV - Genèse de la pyrophyllite 132

1 - La pyrophyllite est une néoformation de la zone de diagenèse 132
2 - La pyrophyllite est associée à des sels (dolomite, calcite, halite, gypse) 132
3 - La pyrophyllite se développe dans les zones subsidentes 133

Pages

4 - Hypothèses proposées 133

a) Diagenèse précoce 133
b) Diagenèse tardive 133

V - Conclusions 134

CHAPITRE 7 - LE FORAGE DE PIERREFEU 1. (Gard, France) 135

I - Situation géologique 135

II - Les séries 136

III - Les minéraux argileux 138

1 - La montmorillonite 138
2 - Les interstratifiés illite-montmorillonite 139
3 - L'illite 139
4 - La chlorite 139
5 - La kaolinite 141

IV - La chimie 142

A - Eléments majeurs 142

1 - Roche totale et fraction inférieure à 2μ ont des compositions chimiques très voisines 142
2 - Teneur en sodium de la roche totale 142
3 - Teneur en fer total de la fraction fine 142

B - Eléments en traces et chimie organique 142

1 - Eléments en traces 143
2 - Chimie organique 143

V - Données complémentaires 144

1 - Le "pouvoir réflecteur" des particules charbonneuses 144
2 - La densité globale des roches 144

VI - Conclusions partielles à l'étude du forage de Pierrefeu 1 144

Variations sédimentologiques 144
Variations diagénétiques 145

CHAPITRE 8 - LE FORAGE DE CONTRES (Sud-ouest du Bassin de Paris) 147

I - Lithologie du Permo-trias 148

II - Les minéraux des argiles 148

1 - L'illite 148

Cristallinité 148
Type d'ouverture 148
Relation entre cristallinité et constitution chimique 150

2 - Les interstratifiés 150

3 - La chlorite 151

4 - La kaolinite 151

III - Données chimiques 151

IV - Conclusion 152

CHAPITRE 9 - LE FORAGE D'ADAMSWILLER (Alsace) 153

I - Le Permien 153

II - Le Permo-carbonifère 153

Pages

III - La dickite 153

IV - L'illite 153

1 - La largeur du pic à 10 Å 155
2 - Le rapport d'intensité des pics à 5 Å et 10 Å 155
3 - Les polymorphes 155

V - Résumé et conclusion partielle 156

CHAPITRE 10 - LES "TERRES NOIRES" JURASSIQUES DANS LE SUD-OUEST DES ALPES FRANCAISES 157

I - Une coupe est-ouest en direction de l'arc alpin 157

1 - Les minéraux des argiles 157

a) La kaolinite et la chlorite 157
b) L'illite 159
c) Les interstratifiés illite-montmorillonite 160

2 - Les données de la chimie minérale 160

a) Capacité d'échange cationique 160
b) Composition chimique de la fraction argileuse 160

3 - L'observation microscopique 161

a) Examen en lame mince 161
b) Microscopie électronique 161

4 - Transformations diagénétiques des débris organiques 161

a) Analyse microscopique des constituants 161
b) Indications stratigraphiques 162
c) Interprétation paléogéographique 162
d) Evolution diagénétique 163

5 - Etude de la matière organique par pyrolyse et chromatographie 163

a) Préparation des échantillons 163
b) Résultats analytiques 163
c) Interprétation des résultats 163

II - Le forage d'Aurel AL 1 164

III - Le forage de Montagne de Lure ML 1 168

IV - Le forage de Grand Luberon GL 1 168

V - Le forage de Pont de Mirabeau PdM 1 170

VI - Conclusion générale à l'étude des "terres noires" 173

1 - Transformations post-sédimentaires liées à l'orogenèse alpine 173
2 - Transformations post-sédimentaires liées à la diagenèse d'enfouissement 174

CHAPITRE 11 - LES CALCSCHISTES DU CRETACE SUPERIEUR DE LA ZONE BRIANÇONNAISE (Alpes occidentales) 175

I - L'échantillonnage 175

1 - La partie centrale du Briançonnais 177
2 - La partie orientale du Briançonnais 177
3 - Les nappes de l'Embrunais 177
4 - La zone métamorphique de Vanoise 177
5 - Les Préalpes fribourgeoises 177

II - Résultats des analyses de laboratoire 177

1 - Minéralogie de la fraction fine décarbonatée 178

Pages

a) La chlorite 178
b) Les micas 179

2 - Analyses chimiques 181

a) Chimie de la roche totale 181
b) Chimie de la fraction fine décarbonatée 181

III - Résumé de l'étude des calcschistes du Crétacé supérieur de la zone briançonnaise 183

1 - Les calcschistes 183
2 - La déshydratation 184
3 - La chlorite 184
4 - La paragonite 184
5 - La muscovite 184

CHAPITRE 12 - MICAS ET CHLORITES DANS LES QUARTZITES ET LES "SCHISTES LUSTRES" DE LA ZONE PIEMONTAISE (Alpes occidentales) 185

I - Les micas des quartzites du Permo-trias 185

1 - Angle des axes optiques 185
2 - Données cristallographiques et chimiques 186
3 - Interprétation des données 186

a) Variations nulles, faibles ou sans relation avec l'intensité du métamorphisme 187
b) Variations en relation avec l'intensité du métamorphisme 187

4 - Conclusion 187

II - Les micas des "schistes lustrés" 188

1 - Pétrographie 188
2 - Résultats des analyses de laboratoire 189
3 - Interprétations 190

a) Paragonite et teneur en sodium 190
b) Cristallinité et teneur en alcalins 190
c) L'équilibre des charges 192
d) Question de nomenclature 192

III - Les chlorites des "schistes lustrés" 192

1 - La composition chimique 193
2 - L'analyse thermique différentielle 193
3 - Les paramètres cristallographiques 194
4 - Les formules structurales 194
5 - Classification des chlorites 194

CHAPITRE 13 - LE PALEOZOIQUE DU VERSANT SUD DE LA MONTAGNE NOIRE (Sud du Massif Central français) 197

I - Le faciès à illite et chlorite 197

1 - Le Viséen et le Silurien 197
2 - Le Cambrien 197
3 - Les micaschistes 197

II - Les minéraux gonflants du Cambrien 199

1 - Montmorillonite 199
2 - Corrensite 199

III - Conclusion 199

Pages

CHAPITRE 14 - LES MICASCHISTES DES PYRENEES ORIENTALES..... 201

I - Situation..... 202

1 - L'enveloppe schisteuse du massif de l'Agly..... 201
2 - Les schistes de la vallée de la Têt..... 201

II - La muscovite des schistes de Canaveilles..... 201

III - La cristallinité des minéraux micacés..... 203

IV - La pyrophyllite du Gothlandien..... 203

V - Données géochronologiques..... 203

4ème PARTIE

VUE D'ENSEMBLE SUR LES MINERAUX ARGILEUX DANS LA DIAGENESE

CHAPITRE 1 - LES MINERAUX DU GROUPE DE LA KAOLINITE..... 207

I - Données cristallographiques..... 207

II - Géologie des minéraux argileux kaoliniques..... 207

1 - L'altération superficielle en milieu lessivé, acide, et les kaolins sédimentaires..... 208
2 - Les diagenèses acides..... 208
3 - Les tonstein..... 208
4 - Les gîtes hydrothermaux..... 208

III - La kaolinite dans la sédimentogenèse et la diagenèse moyenne..... 209

1 - La kaolinite, minéral détritique, indicateur paléogéographique..... 209

a) Le bassin de sédimentation des "Terres Noires" jurassiques..... 209
b) Le Paléozoïque du bassin de Polignac (Sahara)..... 209
c) L'Oligocène de Pierrefeu..... 209

2 - Remplacement ou néoformation de kaolinite par diagenèse..... 210

A - Circulation de solutions alcalines : remplacement de la kaolinite..... 210
B - Circulation de solutions acides : néoformation de la kaolinite..... 210

IV - L'évolution des minéraux kaoliniques dans la diagenèse profonde et l'anchizone..... 210

1 - La destruction de la kaolinite au cours de l'enfouissement..... 210

A - Les données des forages profonds..... 210
B - L'absence de la kaolinite dans les vieilles séries..... 212

2 - La dickite dans la zone de diagenèse..... 212

a) Grès crétacés de Logbaba..... 212
b) Argilites permiennes d'Adamswiller..... 212
c) Autres observations de dickite..... 212
d) L'évolution cristallographique kaolinite ⟶ dickite ⟶ nacrite..... 213

Néoformation..... 213
Dégradation..... 213
Agradation..... 213

1 .. Dans l'épigenèse profonde..... 213
2 .. Dans la métagenèse..... 213

3 - Données expérimentales sur la stabilité de la kaolinite..... 215

V - Le cycle des minéraux du groupe de la kaolinite..... 215

1 - L'hexacoordination de l'aluminium..... 215

Pages

2 - Signification de la présence ou de l'absence de kaolinite dans les séries. 215
3 - L'absence de kaolinite dans l'anchizone 216

CHAPITRE 2 - LES MONTMORILLONITES 217

I - Genèse des montmorillonites dans le cycle géologique 217

1 - Dans les sols 217

a) Dans les sols tempérés lessivés 217
b) Dans la ferrallitisation 217
c) Dans les sols tropicaux mal drainés 217

2 - Dans la sédimentation chimique basique 217
3 - Dans les bentonites 217
4 - Dans les filons hydrothermaux 218

II - Evolution diagénétique des montmorillonites 218

1 - Diagenèse précoce 218

a) Les néoformations 218
b) Les agradations 218

2 - Les montmorillonites dans les sédiments anciens 218
3 - La diagenèse d'enfouissement 219

III - Transformations expérimentales des montmorillonites 221

1 - A température et pression ordinaires 221
2 - A température et pression élevées 222

a) Transformation des montmorillonites dans des solutions magnésiennes entre 300°C et 85 bars et 600°C et 1 000 bars 222
b) Transformation d'argiles montmorillonitiques dans l'eau de mer entre 200°C et 15 bars et 400°C et 325 bars 222
c) Déshydratation des montmorillonites par chauffage sous pression 222
d) Autres travaux 223

IV - Conclusions 223

1 - L'évolution générale des montmorillonites 223
2 - L'instabilité des montmorillonites dans la diagenèse 224
3 - Contribution des montmorillonites à la zonéographie de la diagenèse 224

CHAPITRE 3 - LES MINERAUX ARGILEUX INTERSTRATIFIES 225

I - L'origine des minéraux argileux interstratifiés détritiques dans les sédiments 225

1 - Les matériaux d'origine 225
2 - Les mécanismes d'altération 226

II - L'agradation des interstratifiés dans la sédimentation et la diagenèse précoce 226

1 - Données sur les sédiments récents 226
2 - Le cas des métabentonites ou bentonites potassiques 227
3 - La corrensite 228

III - Les interstratifiés dans la diagenèse profonde 228

1 - Les interstratifiés chlorite-vermiculite 228
2 - Les interstratifiés illite-montmorillonite 229

A - Illitisation progressive par diminution du taux d'interfoliaires gonflants 229
B - Développement d'interstratifiés réguliers de type allevardite ou rectorite 230

- Mise en évidence 230
- Données cristallographiques 231
- Conditions de genèse 231

Pages

IV - Conclusions sur la place des interstratifiés dans l'évolution diagénétique..... 232

CHAPITRE 4 - L'ILLITE DANS LA ZONE DE DIAGENESE..... 235

I - Minéralogie et géologie des minéraux argileux micacés..... 235

1 - Les travaux antérieurs à la définition de l'illite (1937)..... 235
2 - Les travaux postérieurs à 1937..... 235

II - La morphologie des particules d'illite..... 236

1 - Logbaba : passage de l'illite-montmorillonite à l'illite (diagenèse moyenne)..... 236
2 - "Terres Noires" : passage de l'illite à la séricite (diagenèse poussée, métamorphisme)..... 236

III - Les variétés polymorphiques de l'illite..... 236

1 - Généralités..... 236
2 - Méthodes de détermination..... 236
3 - Résultats des mesures..... 237

a) Ce mémoire..... 237
b) Autres travaux d'ensemble..... 237
c) Mesures isolées..... 238

4 - Conclusions..... 238

IV - La fermeture des feuillets : cristallinité de l'illite..... 239

1 - Introduction. Définitions..... 239
2 - Résultat des mesures..... 240

a) Généralités..... 240
b) Cristallinité et paléogéographie..... 240
c) Cristallinité et lithologie..... 240
d) Cristallinité et géochimie..... 241

- Teneur en aluminium de la couche octaédrique..... 241
- Teneur en sodium des espaces interfoliaires..... 241

e) Cristallinité et diagenèse d'enfouissement..... 241
f) Cristallinité et front de métamorphisme..... 242

3 - Conclusion..... 242

V - La cristallochimie des illites..... 242

1 - Données générales..... 242
2 - Influence de la constitution chimique des illites sur leur diagramme de rayons X..... 243
3 - L'évolution chimique des illites dans la diagenèse et le métamorphisme. 245

a) Logbaba..... 245
b) Terres Noires..... 245

VI - Contribution de l'illite à la zonéographie de la diagenèse..... 245

La zone de sédimentation..... 245
La diagenèse précoce..... 246
La diagenèse tardive..... 246
L'anchizone..... 247
L'épizone..... 247

CHAPITRE 5 - LES MICAS AU SOMMET DE L'EPIZONE..... 249

I - Evolution de quelques paramètres cristallographiques..... 249

1 - Variation de l'espacement basal $d(002)_{2M}$: muscovites paragonitiques 249

Pages

2 - Le développement de paragonite 249
3 - Cristallinité et rapport d'intensité des pics à 5 et 10 Å 250

II - Evolution cristallochimique 250

1 - Le point de départ : les illites 250
2 - Le passage des illites de la diagenèse aux micas de l'épizone 252

a) Continuité des phénomènes : problème de nomenclature 252
b) Les principaux itinéraires 253

Conclusion 253

CHAPITRE 6 - EVOLUTION DIAGENETIQUE ET METAMORPHIQUE DES CHLORITES... 255

I - Introduction au groupe des chlorites 255
II - Les agradations diagénétiques 255

1 - Stabilité au chauffage 255
2 - Epaisseur du feuillet d(001) et aluminium tétracoordonné 256
3 - Intensité des raies 00*l* et teneur en fer et magnésium 256
4 - d(060) : chlorites trioctaédriques et dioctaédriques 256
5 - Agradations expérimentales 257

III - Les chlorites de l'épizone 257

1 - Résultats exposés dans ce mémoire 257

a) Les calcschistes de la zone briançonnaise 257
b) Les schistes lustrés de la zone piémontaise 258

2 - Données bibliographiques 258

IV - Conclusion 259

CHAPITRE 7 - LES MINERAUX ARGILEUX DANS LA DIAGENESE. VUE D'ENSEMBLE SUR LA DIAGENESE DES SILICATES 261

I - Introduction 261

1 - Les échelles d'observation en géologie 261

a) L'échelle de la lithosphère 261
b) L'échelle des massifs et des bassins 261
c) L'échelle des roches 262
d) L'échelle des minéraux 262
e) L'échelle des réseaux cristallins et des ions 262

2 - A l'échelle des roches : la diagenèse des sédiments 262

II - L'évolution diagénétique de la silice et des silicates non argileux 263

1 - Les roches siliceuses 263
2 - Le quartz 264
3 - La muscovite 264
4 - Les ferromagnésiens 265
5 - Feldspaths, feldspathoïdes, zéolites 265

A - Les feldspaths 265
B - Feldspathoïdes et zéolites 266

- Zéolitisation des produits volcaniques 266
- Le faciès zéolitique 266

6 - Les minéraux lourds 266
7 - Au terme de cette revue 266

III - L'évolution diagénétique des minéraux argileux 267

1 - Le schéma de MILLOT : dégradation-agradation, milieu-lessivé, milieu confiné 267

Pages

a) La genèse des idées 267
b) Les deux grandes voies de l'évolution des silicates à la surface de l'écorce terrestre 267

En milieu lessivé 267
En milieu confiné 268
Dynamique des ions : le rôle de l'aluminium 268

2 - Contribution des minéraux argileux à la zonéographie de la diagenèse ... 268

a) La diagenèse précoce 268
b) La diagenèse moyenne 269
c) La diagenèse profonde ou tardive 270
d) L'anchizone 270
e) L'épizone métamorphique 271
f) La diagenèse régressive 272

3 - Le jeu des remplacements isomorphiques dans les réseaux cristallins ... 272

a) Les substitutions tétraédriques 272
b) Les substitutions octaédriques 272
c) Les échanges interfoliaires 273

4 - Ordre, désordre et croissance des cristaux 274
5 - La ventilation des ions au cours de la diagenèse 274

a) Le silicium 274
b) L'aluminium 274
c) Le fer 275
d) Le magnésium 275
e) Le potassium 275
f) Le sodium 276

IV - Conclusion générale 276

LISTE DES TRAVAUX CITES 279

TABLE DES MATIERES 305

SECONDE THESE
Propositions données par la Faculté

Strasbourg, le 19 août 1969
Le Président du Jury,

G. MILLOT

VU et Permis d'imprimer
Strasbourg, le 22 septembre 1969

LE DOYEN,

J.H. VIVIEN

IMPRIMERIE LOUIS-JEAN
Publications scientifiques et littéraires
TYPO - OFFSET
05 - GAP - Téléphone 14-23 14-24

Dépôt légal 492 - 1970